

Speicherung und Charakterisierung von Nanopartikeln mit einer optischen Pinzette

Diplomarbeit

Technische Universität Chemnitz
Institut für Physik

vorgelegt von

Michael Grimm

31. Januar 2000

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit wird versichert, dass diese Arbeit selbstständig angefertigt wurde. Die benutzten Quellen und Hilfsmittel sind angegeben.

Chemnitz, 31. Januar 2000

Michael Grimm

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Theorie	7
2.1	Kraftbetrachtungen	7
2.1.1	Lichtkräfte	7
	Große Teilchen ($x \gg 1$)	9
	Kleine Teilchen ($x \ll 1$)	11
2.1.2	Stokesreibung	13
2.1.3	Photophorese	13
2.1.4	Gewichtskraft	17
2.1.5	Elektrostatische Kraft	17
2.1.6	Übersicht	18
2.2	Farbzentren im Diamant	21
3	Experimenteller Aufbau	24
3.1	Aufbau des Tweezers	24
	Laser und Vakuumkammer	24
	CCD-Kamera	27
	Optik	27
	Teilchenquelle und Kondensator	29
	Spektrometer	31
3.2	Diamantproben	32
4	Untersuchungen und Ergebnisse	33
4.1	Spektroskopische Untersuchungen	33
4.1.1	Farbzentren in Nanodiamanten	33

4.1.2	Spektroskopie an Farbstoffmolekülen	36
4.2	Experimente zur Kräftecharakterisierung	40
4.2.1	Geschwindigkeiten und Größenverteilung	41
4.2.2	Elektrostatische Kraft	44
4.2.3	Levitation großer Partikel mit variablem I und p	44
5	Zusammenfassung und Ausblick	53
	Literaturverzeichnis	

Kapitel 1

Einleitung

Die Entwicklung von optischen Fallen durch Ashkin [Ash70] eröffnete eine Reihe von neuen Möglichkeiten im Bereich der Speicherexperimente. So sind beispielsweise Laserpinzetten und Laserskalpelle in der Zellbiologie weit verbreitet. Mit ihrer Hilfe können einzelne Zellbestandteile, wie DNA oder Zellkern, gezielt gespeichert und manipuliert werden [Ber98]. Dabei kommen vor allem kommerzielle Geräte zum Einsatz. Sie bestehen meist aus einem Auflichtmikroskop, in das IR-Licht eines Nd:YAG-Lasers eingekoppelt wird. Dieser Laser dient zur Levitation (Laserpinzette). Um Zellbestandteile zu manipulieren, z.B. zerschneiden, verwendet man zusätzlich einen im UV-Bereich emittierenden N_2 -Laser (Laserskalpell). Die gespeicherten Zellen bzw. Zellbestandteile befinden sich dabei in einer Lösung.

Unser Anliegen ist das Einfangen und Speichern von kleinen Partikeln mit einer optischen Pinzette. Ein Ziel ist es, ein einzelnes Teilchen zu isolieren und weiteren Untersuchungsmethoden, z.B. der Massenbestimmung in einer Paulfalle zuzuführen. Dabei geht es in dieser Arbeit vor allem um das Sammeln von Erfahrungen im Umgang mit dieser Speichertechnik. Daraus ergibt sich ein großes Interesse für das Verständnis der Wechselwirkung zwischen eingestrahlttem Licht und gefangenem Teilchen. Im Gegensatz zu den Anwendungen in der Biologie sollen sich die in der Arbeit gespeicherten Proben in einer Gasatmosphäre mit geringem Druck befinden. Langfristig soll die Speichermethode auch im Ultrahochvakuum eingesetzt werden. In diesem Regime gewinnen Kräfte an Bedeutung, die unter Normalbedingungen vernachlässigbar klein sind. Die Einwirkung der Restgasmoleküle auf kleine Teilchen kann z.B. Kräfte verursachen, die die Gewichtskraft um Größenordnungen übersteigt. Andererseits werden Kräfte klein, die bei Normalbedingungen dominant

sind. Zum Beispiel spielt die Gravitationskraft bei sehr kleinen Teilchen kaum noch eine Rolle.

In dieser Arbeit wird mit Diamantstaub gearbeitet, dessen Kristallite ca. 5 nm groß sind. Die Diamantkristalle liegen hauptsächlich als Agglomerate vor, von deren Form und Größe nichts bekannt ist. Alle in diesem Zusammenhang zu betrachtenden Kräfte besitzen eine sehr starke Größenabhängigkeit und wahrscheinlich auch eine Formabhängigkeit. Deshalb müssen viele Kräfte und Versuchsbedingungen in Betracht gezogen und zueinander in Beziehung gesetzt werden. Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, diese Kräfte und Effekte quantitativ zu charakterisieren und die optische Pinzette als Werkzeug für kommende Anwendungen handhabbar zu machen.

Ein weiterer wichtiger Aspekt ist die Untersuchung des Fluoreszenzverhaltens der eingesetzten Partikel. Hintergrund ist dabei die Idee, auch kleine Teilchen in einem Speicher zu beobachten. Von sehr kleinen Teilchen ist nur wenig Streulicht zu erwarten. Das Streulicht nimmt mit der sechsten Potenz des Radius ab und ist so für einen einzelnen Partikel kleiner 100 nm praktisch nicht mehr nachweisbar. Experimente mit konfokaler Mikroskopie zeigen, dass man Fluoreszenz von einzelnen Farbzentren beobachten und somit den Nachweis eines Teilchens führen kann ([Gru97]). Voraussetzungen für eine gute Verwendbarkeit sind: hohe Fluoreszenzausbeute (QE), geringes Ausbleichen und hohe thermische Stabilität. Diamanten besitzen dafür gute Voraussetzungen. Man kann im Diamant auf relativ einfache Weise Farbzentren erzeugen, die ein einfaches Energieniveauschema besitzen. Einige dieser Farbzentren besitzen ein Emissionsspektrum im sichtbaren Bereich. Auf ähnliche Art und Weise können auch einzelne Ionen in einem Hochfrequenzspeicher nachgewiesen werden.

Der Grundgedanke für den Aufbau dieses Experimentes liegt darin, die beiden Ziele, wohl lokalisierte Speicherung eines einzelnen Nanopartikels und Charakterisierung des Partikels mittels Fluoreszenznachweis, in einer Apparatur zu verknüpfen. Der Laser dient dabei gleichzeitig zur Speicherung und Anregung des Teilchens. In dieser Arbeit wird gezeigt, dass dieses Ziel so einfach nicht verwirklicht werden kann. Das Fluoreszenzsignal von undotierten Proben ist sehr schwach und mit den zur Verfügung stehenden Detektionsmitteln in Echtzeit nicht darstellbar. Andererseits lassen sich mit vielen Farbzentren dotierte Proben aufgrund ihrer großen Absorption nicht im Laserfeld speichern. Alternativ dazu fanden Proben Verwendung, die mit Farbstoffmolekülen bedeckt waren. Diese besitzen den Nachteil des schnellen Ausbleichens. Eine interessante Möglichkeit ist die Kombination mit einer Paulfalle. In

diesem Fallentyp können die stark absorbierenden Teilchen problemlos gespeichert und detektiert werden. Erste Experimente in diese Richtung werden gegenwärtig vorbereitet.

Kapitel 2

Theorie

2.1 Kraftbetrachtungen

In den wohlbekannten Arbeiten zur Laserlevitation ([Ash70]) wird die Gradientenkraft, die im Fokus des Lasers ihre Richtung ändert, für die Speicherung der Partikel verantwortlich gemacht. Danach werden die Teilchen bis auf eine Verrückung im Bereich der Partikelgröße im Fokus gehalten. Erste Beobachtungen in unserem Versuchsaufbau zeigten, dass dies für die meisten Teilchen nicht der Fall ist. Daher müssen auch andere Kräfte mit in Betracht gezogen werden. Ihre Größe und Richtung in Abhängigkeit von der Teilchengröße werden in diesem Kapitel zusammengestellt.

2.1.1 Lichtkräfte

Optische Levitationsmethoden haben seit ihrer Entdeckung durch A. Ashkin im Jahre 1970 [Ash70] zahlreiche Anwendungsmöglichkeiten gefunden. So dienen „Laserpinzetten“ heute zur Untersuchung von Atomen, Mikrotröpfchen und -partikeln, aber auch zur Präparation und Manipulation von einzelnen Zellen und organischen Molekülen. Die dabei wirkenden Kräfte werden nur durch die Photonen hervorgerufen. Sie sind groß genug, um Partikel im Fokus eines Laserstrahls zu fixieren. Dabei gibt es verschiedene optische Aufbauten, um die Teilchen mit Laserlicht zu speichern. Zur Speicherung der Partikel benötigt man neben der Gravitationskompensation noch Rückstellkräfte in andere Richtungen. Daraus ergibt sich ein kompliziertes Kraftfeld, welches ein Speicherpotential erzeugt. Ob dieses Potential attraktiv oder

repulsiv ist, hängt nur von den Richtungen aller beteiligten Kräfte und speziell von deren Summe ab. Hier kommt der vektorielle Charakter der Kräfte zum Tragen. In den ersten Arbeiten wurden die Teilchen durch einen dem Schwerfeld entgegen wirkenden Laserstrahl gehalten. Die vom Laser erzeugte Streukraft wirkt der Gewichtskraft entgegen. Um das Teilchen auch in die anderen Dimensionen zu stabilisieren, machte sich ein zweiter, senkrecht dazu gerichteter Laserstrahl notwendig. Später ging man zur sogenannten single beam gradient force trap ([Ash86]) über, bei der der Laserstrahl senkrecht zur Gravitation gerichtet ist. Die Kräfte reichen zur Gravitationskompensation und damit zur Speicherung vollkommen aus. Diese Methode ist heute auch die gebräuchlichste. Die dabei zum Speichern wesentlichste Kraft in allen mir bekannten Experimenten ist die Gradientenkraft. Diese Kräfte und deren Ursache werden im folgenden erläutert. Ein anderer wichtiger Aspekt bei diesen Überlegungen sind die Teilcheneigenschaften. Insbesondere von Bedeutung sind Größe, Form, Absorption und z.B. auch die Wärmeleitung der Teilchen. Obwohl die Form der in den durchgeführten Experimenten verwendeten Partikel unbekannt ist, werden alle nachfolgenden Betrachtungen für Kugeln durchgeführt. Jedem Teilchen mit dem Radius R kann man den Mie-Parameter

$$x = \frac{2\pi R}{\lambda} \quad (2.1)$$

zuordnen. λ ist die Wellenlänge des einfallenden Laserfeldes. Die für das Teilchen neben der Form dominante Eigenschaft ist der Brechungsindex \tilde{n} . Dieser ist durch

$$\tilde{n}(\lambda) = n(\lambda) + i\kappa(\lambda) \quad (2.2)$$

gegeben. $n(\lambda)$ ist die Brechung und $\kappa(\lambda)$ ist die Absorption des Teilchens. Mit diesen Parametern (Gl. 2.1 und Gl. 2.2) lassen sich die Teilchen in große und kleine bzw. schwach absorbierende und stark absorbierende, also insgesamt vier Klassen, einteilen. In den vorliegenden Experimenten waren die Partikel zumeist schwach absorbierend und relativ groß bezogen auf die Lichtwellenlänge ($x \geq 1$). Daher soll dieser Fall bei der Diskussion der Lichtkräfte zuerst angesprochen werden.

Große Teilchen ($x \gg 1$)

Die Entstehung der Lichtkräfte kann man sich für große Partikel mit Hilfe der Strahlenoptik veranschaulichen. Trifft ein Strahl auf ein Partikel mit einem Brechungsindex $n > 1$, $\kappa \simeq 0$, so wird er wie von einer Linse gebrochen. Diese Richtungsänderung des Strahls ist mit einem Impulsübertrag und damit einer Kraft auf das entsprechende Teilchen verbunden. Im Bild 2.1 sind die Kräfte und deren Resultierende für zwei typische Teilstrahlen a und b dargestellt. Der Kugelmittelpunkt liegt auf

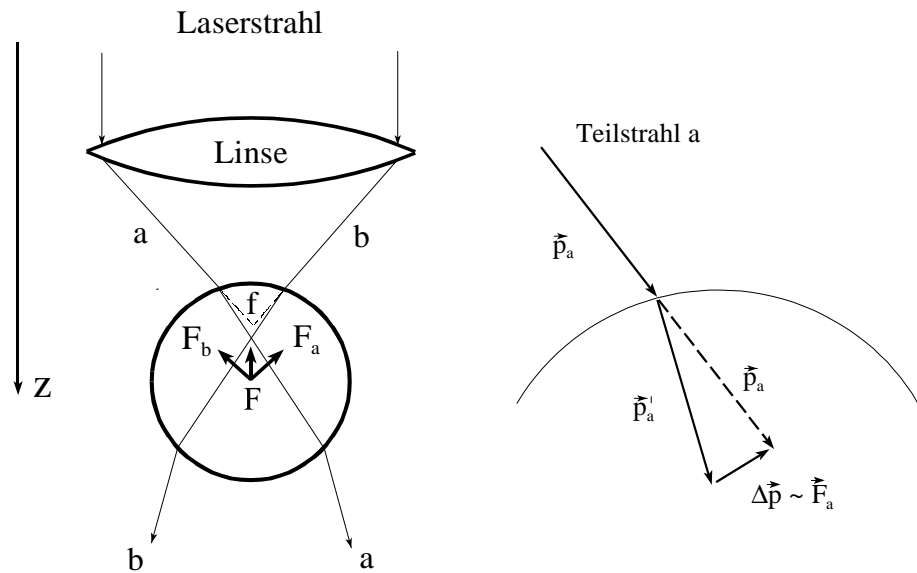


Abb. 2.1: Kraftentstehung durch zwei Teilstrahlen a und b (links) und Impulsänderung des Teilstrahls a (rechts). Die Reflexion ist zur Vereinfachung hier nicht mit dargestellt, wird aber in den Berechnungen zur Kraft berücksichtigt.

der Strahlachse z hinter dem ursprünglichen Fokus f der Linse. Rechts im Bild ist die Impulsänderung des Teilstrahles a und die dadurch hervorgerufene Kraftwirkung dargestellt. Ähnliche Überlegungen gelten, wenn der Strahl das Teilchen wieder verlässt. Die resultierende Kraft aus a und b zieht das Teilchen in den Fokus. Befindet sich das Teilchen vor dem Linsenfokus, so ergeben sich analoge Kräfte, die das Teilchen in den Fokus hineindrücken. Für den Fall, dass der Teilchenmittelpunkt nicht auf der Strahlachse liegt, gelten ähnliche Beziehungen [Ash92]. Jeder einfallende Lichtstrahl erzeugt eine Kraftkomponente. Die Gesamtkraft erhält man durch Summation über sämtliche Teilstrahlen.

Ein Lichtstrahl lässt sich im Bild der geometrischen Optik in eine Vielzahl von Einzelstrahlen zerlegen. Dabei wird jeder Einzelstrahl wie eine ebene Welle behandelt, d.h. er besitzt eine bestimmte Richtung, Intensität und Polarisation. Die Abbildung 2.2 veranschaulicht die Kräfteinstellung. Die Strahlen werden in der Linsenebene gebrochen und treffen unter dem Winkel ϕ auf die Teilchenoberfläche. Dort wird der Strahl gebrochen. Die Richtungsänderung hat auch eine Impulsänderung zur Folge. Die ursprüngliche Strahlrichtung ist durch die gestrichelte Linie angegeben. Das Auftreffen des Strahls auf das Teilchen erzeugt eine Kraft in Strahlrichtung, die sogenannte Streukraft F_S . Ihre Komponente ist parallel zur Richtung des ursprünglichen Strahles. Durch den Impulsübertrag bei der Brechung entsteht eine weitere

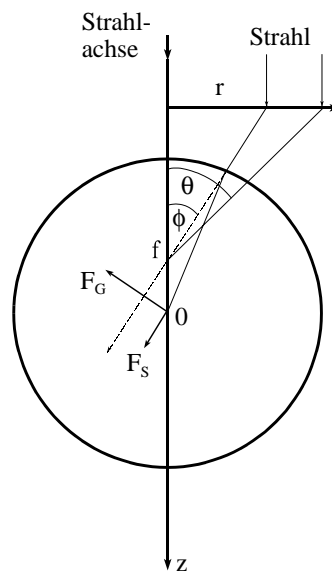


Abb. 2.2: Geometrie zur Erklärung der Haltekräfte. Der Einzahlstrahl verursacht eine Streukraftkomponente und eine Gradientenkraftkomponente.

Kraft, die Gradientenkraft F_G . Sie zeigt in Richtung des Intensitätsgradienten des einfallenden Strahlungsfeldes. Diese Kräfte müssen nun für alle Teilstrahlen bis zum maximalen Einfallswinkel θ aufsummiert werden. Dabei entstehen durch die Strahlen, die mit einem großen Winkel auf die Teilchenoberfläche auftreffen, die größten Kräfte. Für den Betrag der Gradientenkraft, die immer in Richtung Fokus zeigt, gilt die Beziehung

$$F_G = \frac{n_t P}{c} Q_G, \quad (2.3)$$

und für die Streukraft analog

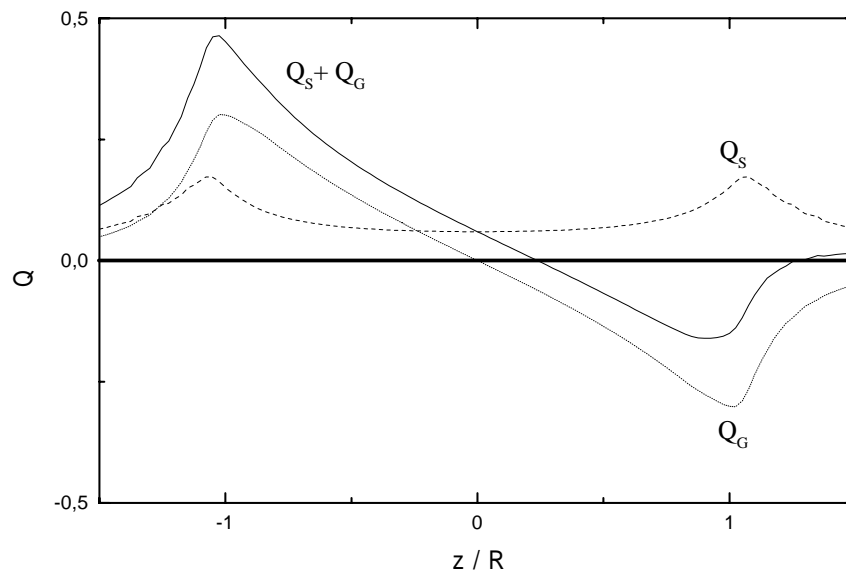
$$F_S = \frac{n_t P}{c} Q_S . \quad (2.4)$$

n_t ist der Brechungsindex des Teilchens und n_m der des umgebenden Mediums, c ist die Lichtgeschwindigkeit und P ist die auf das Teilchen einwirkende Leistung. Es gilt $P = I \cdot A_{\text{Teilchen}}$, mit $A_{\text{Teilchen}} = \pi \cdot R^2$. Die Größenabhängigkeit der Streukraft und der Gradientenkraft ist proportional R^2 . Q ist ein dimensionsloser Faktor, der den relativen Impulsübertrag auf das Teilchen angibt. Im Bereich der geometrischen Optik kann er Werte von 0 bis 2 annehmen, der Wert 1 bedeutet vollständige Absorption und der Wert 2 spiegelnde Totalreflexion (doppelter Impulsübertrag).

Eigentlich muss man für die genaue Berechnung von Q die Mie-Theorie anwenden [Hul81] und berücksichtigen, dass die Beleuchtungsintensität nicht homogen ist [Ash92]. Bis auf Ausnahmen ändern diese Details an der Größenordnung von Q und damit der Lichtkräfte nichts und bleiben daher in den weiteren Betrachtungen unberücksichtigt. In Abbildung 2.3 sind die Werte für Q_G und Q_S sowie deren Summe entlang der Strahlachse dargestellt. Für den Streukraftanteil Q_S ergeben sich zwei Maxima bei $z/R = 1$ und $z/R = -1$. In diesen beiden Fällen befindet sich entweder die Vorder- oder die Rückseite im Fokus. Das bedeutet eine maximale Intensitätseinwirkung auf diese Flächen und damit eine maximale Streukraft. Beim Gradientenkraftanteil Q_G ist der Vorzeichenwechsel auffällig. Diese Kraft zeigt tatsächlich stets in Richtung Fokus. Wirken nur die Lichtkräfte, dann wird die Speicherung des Teilchens durch die Summe beider Kräfte bestimmt. Die Streukraft „schiebt“ dabei das Teilchen immer vor sich her, während die Gradientenkraft das Teilchen in Richtung Fokus zieht. Um eine Nettokraft in Richtung Fokus zu erhalten, muss diese Summe vor dem Fokus (negatives z) positiv und nach dem Fokus (positives z) negativ sein. Nur dann kann das Teilchen in den Fokus gelangen.

Kleine Teilchen ($x \ll 1$)

Für Teilchen, deren Durchmesser klein gegen die Wellenlänge des einfallenden Strahles ist, müssen die Kraftwirkungen mit Hilfe der vorhandenen Felder beschrieben werden.

Abb. 2.3: Q -Werte für Streu- und Gradientenkraft

Die Streukraft lässt sich mit Hilfe der Intensität I_0 , des effektiven Brechungsindex $m = n_t/n_m$ und der Wellenlänge λ des einfallenden Lasers als

$$\vec{F}_S = \frac{I_0}{c} \frac{128\pi^5 R^6}{3\lambda^4} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) n_t \vec{e}_z \quad (2.5)$$

beschreiben [Ash86].

Befindet sich ein dielektrischer Partikel mit einer Polarisierbarkeit α im elektromagnetischen Feld eines Lasers, so wird am Partikel ein Dipol induziert. Für das Dipolmoment gilt

$$\vec{p} = \alpha \vec{E} \quad (2.6)$$

Auf diesen Dipol wirkt nun die Gradientenkraft, die zum Punkt des größten Feldgradienten zeigt. Dieser befindet sich im Fokus des inhomogenen elektromagnetischen Feldes. Die Gradientenkraft ist mit 2.6 demnach [Har96]

$$\vec{F}_G = (\vec{p} \cdot \vec{\nabla}) \vec{E} \quad (2.7)$$

$$= 4\pi n_m^2 \epsilon_0 R^3 \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \frac{1}{2} \vec{\nabla} E^2 \quad (2.8)$$

$$= \frac{2\pi n_m R^3}{c} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \vec{\nabla} I . \quad (2.9)$$

Man erkennt, dass sowohl die Streukraft als auch die Gradientenkraft im Falle $x \ll 1$ stark von der R^2 -Abhängigkeit für $x \gg 1$ abweicht. Andererseits zeigt sich, dass die Richtung der Kräfte im Fall der Streukraft in Fortpflanzungsrichtung und im anderen Fall in Richtung des Gradienten der Intensität zeigt. Damit ändert sich mit x zwar die Größe der Kraft, aber nicht deren Natur. Letzteres kann auch daran sehen, dass sogar Atome durch die Dipolkraft gespeichert werden [Wei99].

2.1.2 Stokesreibung

Wird ein sphärischer Partikel in einem Fluid (Gas oder Flüssigkeit) mit einer Geschwindigkeit v angeströmt, so erfährt er die Stokessche Reibungskraft. Sie ist im Bereich einer laminaren Strömung ($Re < 2000$), und im Bereich $R \gg \Lambda$ (mittlere freie Weglänge) durch

$$\vec{F}_{Stokes} = 6\pi\eta R \vec{v} \quad (2.10)$$

gegeben. η ist die Viskosität des umgebenden Mediums. Die Viskosität ist im Falle eines idealen Gases temperaturabhängig und nicht druckabhängig. Dies hat auf die Anwendung dieser Kraft unter variablen Druckverhältnissen in den vorliegenden Experimenten einen Einfluss, da sie von der Partikelgröße abhängt.

2.1.3 Photophorese

Befindet sich ein Teilchen in einem intensiven Laserfeld und sind dessen Absorptionseigenschaften nicht vernachlässigbar, so erwärmt es sich. Ist diese Erwärmung anisotrop, so erzeugen die Gasstöße des umgebenden Mediums mit dem Teilchen eine Nettokraft. Diese wird als Thermophorese bezeichnet. Wird die Kraft, durch anisotrope Erwärmung infolge eines intensiven Lichtfeldes hervorgerufen, nennt man sie Photophorese. Diese Kraft ist auch in diesem Fall von mehreren Parametern

abhängig. So spielt zum Beispiel der Druck des umgebenden Mediums eine wichtige Rolle. Ein relevanter Parameter ist dabei die Knudsenzahl K_n . Sie ist für ein sphärisches Teilchen als

$$K_n = \frac{\Lambda}{R} \quad (2.11)$$

definiert, wobei für die mittlere freie Weglänge Λ die Beziehung

$$\Lambda = \frac{3\eta}{n_m m_m v_m} \quad (2.12)$$

gilt. n_m ist die Teilchenzahldichte, m_m die Masse eines Gasteilchens und v_m die thermische Geschwindigkeit. Für die anisotrope Erwärmung gibt es zwei einfache Grenzfälle, die im folgenden diskutiert werden.

• schwache Absorption

Bei einem schwach absorbierenden Teilchen mit $n_t > 1$ wird das Licht in das Teilchen hinein gebrochen. Durch die Brechung wird das Licht in dem Teilchen fokussiert. Das bedeutet, dass in diesem Bereich die Intensität stark zunimmt. Diese Intensitätszunahme führt über die Absorption (wenn auch schwach) zu einer Erwärmung. Damit erwärmt sich die Rückseite (in Strahlrichtung gesehen) stärker als die Vorderseite des Teilchens. Bei Knudsenzahlen kleiner als 1 (die mittlere freie Weglänge des Gases ist klein gegen den Partikelradius), erzeugt der auf dem Teilchen entstehende Temperaturgradient zwischen Vorder- und Rückseite einen Gasstrom, der mit einer Geschwindigkeit v auf dem Teilchen entlangkriecht. In der Literatur [Arn82] wird er auch als Maxwellian creep bezeichnet. In diesem Gasstrom bewegen sich die Gasmoleküle entlang der Teilchenoberfläche von der kälteren Vorderseite zur wärmeren Rückseite. Die Geschwindigkeit einer teilchennahen Schicht ist [Arn82]

$$v = \frac{K \eta_m}{R T_s \varrho_m} \frac{\partial T_s}{\partial \theta} . \quad (2.13)$$

K ist ein Korrekturfaktor (eine Zahl zwischen 0,7 und 1,2), T_s ist die Oberflächentemperatur, ϱ_m ist die Dichte des umgebenden Mediums und η_m dessen Viskosität. Die Definition des Winkels θ zeigt Abbildung 2.4. Auf der heißen

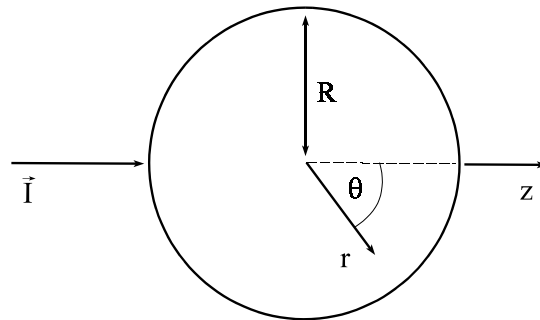


Abb. 2.4: Koordinatensystem zur Gleichung 2.13

Seite des Partikels verlassen die Gasmoleküle die Oberfläche. Sie besitzen aufgrund der Erwärmung eine größere Geschwindigkeit als die restlichen Moleküle auf dem Teilchen. Durch das Verlassen der Oberfläche auf der Rückseite, entsteht gleichzeitig auf der Vorderseite ein Unterdruck. Betrachtet man in einem gewissen Abstand von der Oberfläche des Teilchens eine geschlossene Fläche, dann treten pro Zeiteinheit genauso viele Teilchen aus ihr heraus wie in sie hinein (Teilchenerhaltung). Durch das Anströmen des Teilchens mit der Geschwindigkeit v_s auf der Vorderseite wird eine Stokessche Reibungskraft auf das Teilchen übertragen. Letztlich ist aber die Kraft, die durch den Impulsübertrag der Gasmoleküle auf der Rückseite erzeugt wird, größer. Diese Kraft, die Photophorese, genügt der Beziehung [Arn82]

$$\vec{F}_{Ph} = -\frac{4\pi R \eta_m^2 J K \vec{I}}{\varrho_m T_s K_i}. \quad (2.14)$$

I ist die einfallende Intensität, J ist ein dimensionsloser Faktor (≈ 1) und K_i ist die thermische Leitfähigkeit des Partikels. Die resultierende Kraft zeigt somit in Richtung der Lichtquelle, also entgegengesetzt zur Strahlrichtung. In

diesem Fall spricht man von negativer Photophorese. In Abbildung 2.5 ist das

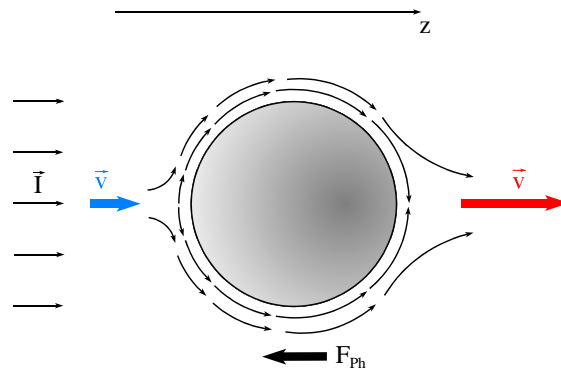


Abb. 2.5: Skizze zur Entstehung der negativen Photophorese

Entstehen der negativen Photophorese schematisch dargestellt.

- **starke Absorption**

Im Falle einer starken Absorption des Teilchens wird viel der einfallenden Intensität vom Teilchen aufgenommen. Daraufhin wird sich die der einfallenden Intensität zugewandte Seite stark erwärmen, während die abgewandte Seite kälter bleibt. Dies bedeutet, dass sich die für die negative Photophorese beschriebenen Verhältnisse umkehren. Diese sind in Abbildung 2.6 dargestellt.

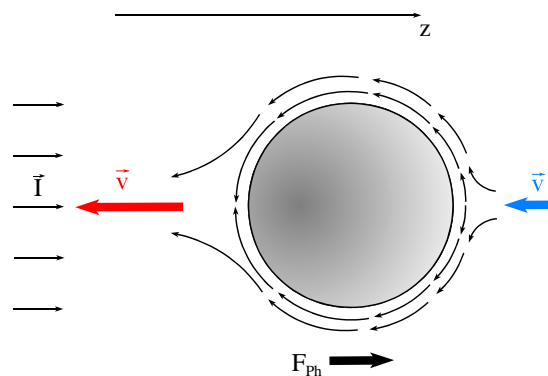


Abb. 2.6: Skizze zur Entstehung der positiven Photophorese

Es gibt eine Nettokraft in Strahlrichtung, die positive Photophorese.

2.1.4 Gewichtskraft

Um ein Teilchen levitieren zu können, müssen die Speicherkräfte groß genug sein um die Gewichtskraft des entsprechenden Teilchens zu kompensieren. Sind die Teilchen sehr klein, ist auch die Gewichtskraft sehr klein. Für ein kugelförmiges Teilchen mit einem Radius R ist die Gewichtskraft durch

$$F_g = mg \quad (2.15)$$

$$= \frac{4}{3}\pi R^3 \varrho_t g \quad (2.16)$$

gegeben.

2.1.5 Elektrostatische Kraft

Befindet sich das levitierte Teilchen in einem elektrischen Feld (z.B. eines Plattenkondensators), so wirkt eine weitere Kraft auf das Teilchen ein, vorausgesetzt, das Teilchen ist geladen. Zwischen den Kondensatorplatten liegt die Potentialdifferenz Φ an. Dadurch entsteht ein elektrisches Feld \vec{E} :

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}\Phi. \quad (2.17)$$

In einem Plattenkondensator mit dem Plattenabstand d gilt für das Feld die Beziehung

$$\vec{E} = \frac{U}{d} \vec{e}_E. \quad (2.18)$$

Die Kraft auf ein mit q geladenes Teilchen ist

$$\vec{F}_{el} = q\vec{E}. \quad (2.19)$$

2.1.6 Übersicht

In diesem Abschnitt werden die beschriebenen Kräfte miteinander verglichen und graphisch dargestellt. Dabei werden Eigenschaften und Bedingungen zugrunde gelegt, die für die im Experiment verwendeten Teilchen gelten oder vermutet werden. Ebenso fließen die eingestellten Versuchsbedingungen ein. Mehrfach auftretende Parameter haben denselben Wert.

Für die Lichtkräfte ist stellvertretend nur die Streukraft F_S angegeben. Die Gradientenkraft besitzt für große Teilchen die gleiche Abhängigkeit ($\sim R^2$), für kleine Teilchen gilt dagegen $\sim R^3$. Die Bereiche Rayleigh / Mie / geometrische Optik sind grob durch die Parameter $x < 1$, $x \cdot (m - 1) \approx 1$ und $x > 1$ und $x \cdot (m - 1) > 1$ charakterisiert. Zusammen mit $m \gg 1$ ergeben sich die angegebenen Verhältnisse, die für Diamant spezifisch sind! (Details: siehe [Hul81] S. 133, Tabelle 8).

Die Photophorese und die Stokeskraft werden nur bis zu Teilchengrößen $R > \Lambda$ (typisch: $\Lambda < 1 \mu\text{m}$) betrachtet, da sonst andere Formeln gelten.

Die Größenordnung pN (10^{-12} N) für die Kräfte auf kleine Partikel hat sich in der Literatur über Laserpinzetten eingebürgert und wird auch in Bild 2.7 verwendet. Aus der Darstellung 2.7 lassen sich folgende Schlüsse ziehen:

Die elektrostatische Kraft hängt nicht (explizit) vom Radius ab. Sie trennt kleine und große Partikel in zwei Bereiche: In dem einem Bereich überwiegt sie alle anderen Kräfte. In diesem Bereich gilt $R < 1 \mu\text{m}$. Im anderen Bereich sind alle anderen Kräfte größer und es gilt $R \geq 1 \mu\text{m}$. Im UHV-Bereich sind die Stokeskraft und die Photophorese sehr klein. In diesem Regime werden die Lichtkräfte dominant. Dies gilt auch für umgebende Medien mit hoher Viskosität. Im mittleren Druckbereich gewinnen Stokeskraft und Photophorese an Bedeutung und dominieren die Lichtkräfte.

Größere Partikel ($> 1 \mu\text{m}$) lassen sich nicht mit Lasertweezern mit $P_{\text{Laser}} \approx 1$ W speichern.

Kraft	Formel	eingehende Größen und typische Werte
Streukraft für $x \ll 1$	2.5	$I_0 = 2,5 \cdot 10^7 \text{ W m}^{-2}$ $c = 3 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$ $\lambda = 514 \text{ nm}$ $m = 3,3$ $n_t = 3,3^a)$ $n_m = 1$
Streukraft für $x \gg 1$	2.4	$n_t = 3,3^a)$ $Q = 0,4$
Stokesreibung	2.10	$\eta = 18,4 \cdot 10^{-6} \text{ Pa} \cdot \text{s}^b)$ $v = 0,1 \text{ m s}^{-1}^c)$
Photophorese	2.14	$J = 1$ $K = 1$ $\varrho_m(100\text{mbar}) = 0,129 \text{ kg m}^{-3}^b)$ $T_s = 300 \text{ K}$ $K_i = 13,5 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}^a)$
Gewichtskraft	2.16	$\varrho_t = 3500 \text{ kg m}^{-3}^a)$ $g = 9,81 \text{ m s}^{-2}$
elektrostatische Kraft	2.19	$q = 100$ $E = 10000 \text{ V m}^{-1}$

Tabelle 2.1: *Formeln und Zahlenwerte für die Kräftegegenüberstellung in Abbildung 2.7,**a) Werte für Diamant, K_i aus [Lid94], sonst [Stö94],**b) Werte für Luft [Stö94],**c) willkürlich, kleinere Werte sind möglich*

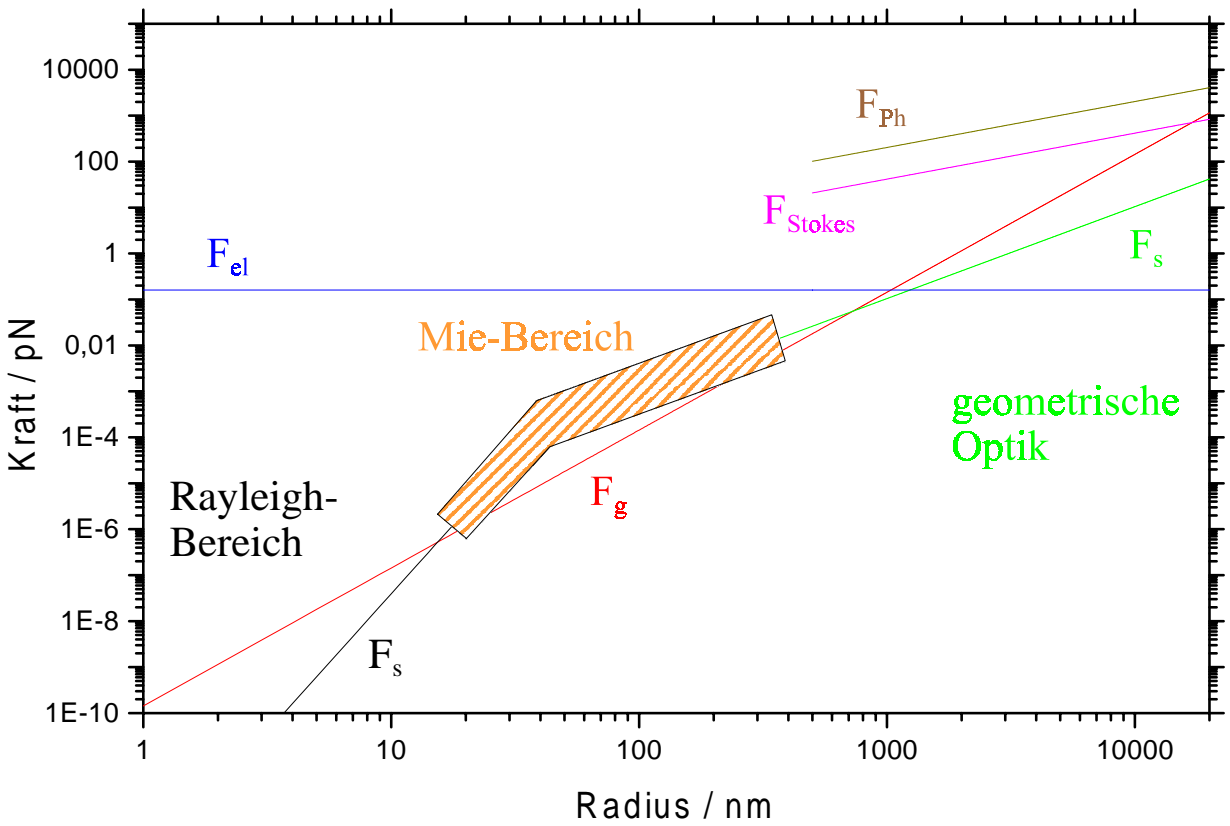


Abb. 2.7: Übersicht der beschriebenen Kräfte: Alle Formeln und relevanten Größen sind in Tabelle 2.1 angegeben. Bei druckabhängigen Beziehungen wurde $p = 100$ mbar angenommen. Der Übergang der Streukraft von kleinen zu großen Teilchengrößen lässt sich mit den in Tab. 2.1 stehenden Formeln nicht exakt angeben, Q wird im Mie-Bereich oszillieren.

2.2 Farbzentren im Diamant

Um Experimente an gespeicherten Partikeln machen zu können, benötigt man Informationen über die Partikel. So ist zum Beispiel ein ständiges „Abfragen“ des Aufenthaltsortes von Bedeutung. Bei Experimenten mit Nanopartikeln < 100 nm ist es jedoch nicht möglich, das Teilchen mit Hilfe eines Streulichtsignals zu beobachten. Emission dagegen kann sogar von einem einzelnen Ion in einem Speicher detektieren werden. Deshalb ist es von großen Vorteil, eine fluoreszenzfähige Probe zu haben. Die in dieser Arbeit verwendeten Diamantpartikel besitzen dafür ideale Voraussetzungen.

Vom Diamant ist bekannt, dass Gitterdefekte oder Fremdatome mit einem benachbarten Kohlenstoffatom ein fluoreszenzfähiges System bilden können. Zudem ist jeder natürliche oder künstliche Diamant mit Fremdatomen verunreinigt. Die häufigste Verunreinigung ist der Stickstoff. Mit einer Fehlstelle im Diamantgitter bildet er das Nitrogen-Vacancy-Zentrum, kurz das N-V-Zentrum. Im Bild 2.8 ist das Diamantgitter mit einem N-V-Zentrum dargestellt. Dieses System lässt sich sehr leicht



Abb. 2.8: Gitterstruktur von Diamant mit N-V-Zentrum [Drä99]

herstellen, da der Stickstoff in den meisten Diamanten bereits enthalten ist. Durch Beschuss mit hochenergetischen Elektronen oder Ionen kann man eine hohe Anzahl von notwendigen Fehlstellen im Gitter erzeugen. Wird der Diamant getempert, so binden sich die beweglichen Fehlstellen an die N-Atome. Das optische Verhalten

des N-V-Zentrums ist den letzten Jahren von vielen Arbeitsgruppen untersucht und beschrieben worden ([Dav92], [Gru97], [Drä99], [Mar99] ...). Ein typisches Emissionsspektrum eines Nanodiamants mit N-V-Zentren zeigt Abbildung 2.9. Auf einem grossen Emissionsberg sind die typischen Linien des N-V-Zentrums zu erkennen. Die Emission dieser Linien liegt bei 575 nm und 637 nm. Dabei handelt es sich (wahrscheinlich) um das neutrale N-V-Zentrum (575 nm), sowie das negativ geladene N-V-Zentrum (637 nm). Die Quanteneffizienz eines Farbzentrs ist so groß,

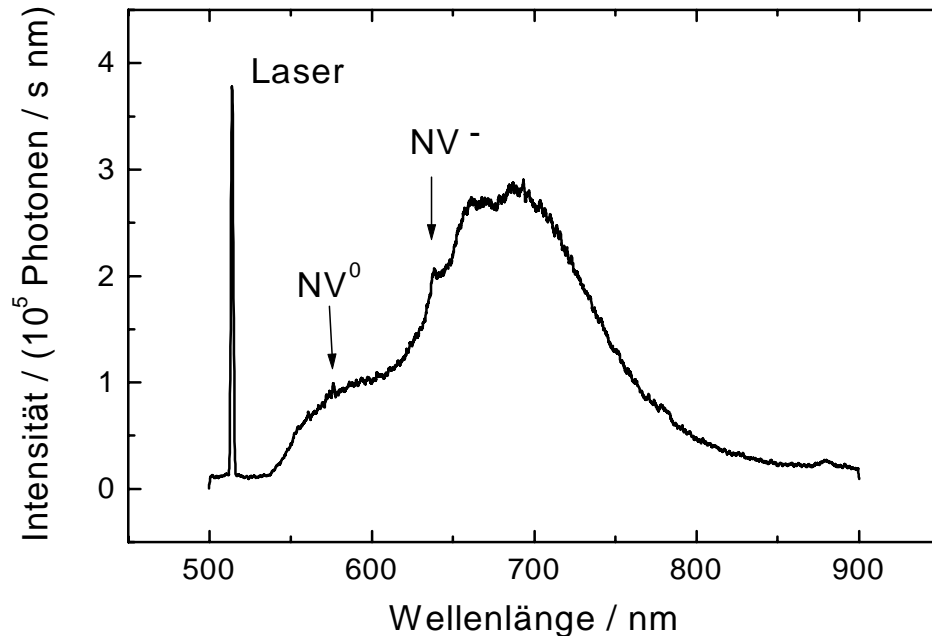


Abb. 2.9: Fluoreszenzspektren von N-V-Zentren nach Bestrahlung mit Germaniumionen. Neben dem typischen Emissionsberg sind die charakteristischen Emissionslinien des N-V-Zentrums zu sehen. Die Messungen wurden mit Dr. Hans Wilhelm im Rahmen des Innovationskolleges [Ink99] durchgeführt.

das man auch die Emission eines einzelnen Farbzentrs beobachten kann [Gru97]. Das bedeutet, dass man auch sehr kleine Proben im nm-Bereich noch detektieren kann. Außerdem sind die Farbzentren sehr photostabil, das heißt, man kann die Proben auch über einen sehr langen Zeitraum immer wieder anregen und beobachten. Farbstoffmoleküle bleichen dagegen schon nach kurzer Zeit aus. Das macht sie für Langzeitbeobachtungen mit hohen Beleuchtungsintensitäten unbrauchbar. Die bisherigen Untersuchungen an Farbzentren fanden stets auf einem Substrat oder

in einer Matrix statt. Die in dieser Arbeit verwendete Levitationsmethode bietet die Möglichkeit, die Proben frei und einzeln zu spektroskopieren. Einflüsse und Emissionssignal vom Substrat sind somit ausgeschlossen. In einer elektrodynamischen Falle hat man zusätzlich noch die Möglichkeit der Manipulation der Partikel. So kann man z.B. das Teilchen mit anderen Materialien bedampfen. Eine mögliche Änderung der Emissionseigenschaften ist dann messbar.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

Der Aufbau und die Funktionsweise einer optischen Pinzette (Tweezer) sind in der Literatur (z.B. [Gre99]) beschrieben. Meist werden dabei Mikroskope benutzt, in die die Laserstrahlung eingekoppelt werden kann. In dieser Arbeit lag der Schwerpunkt in der Manipulation der Teilchen unter variablen Druckbedingungen, möglichst bis ins Ultrahochvakuum. Deshalb wurde der Tweezer in einer Vakuumkammer realisiert.

3.1 Aufbau des Tweezers

Der experimentelle Aufbau für die Laserlevitation ist in Abb. 3.1 schematisch dargestellt. Die einzelnen Komponenten werden im folgenden beschrieben.

Laser und Vakuumkammer

Die Laserlevitation erfolgt in dieser Arbeit durch Fokussierung des Strahles eines Argon-Ionen-Lasers in eine Vakuumkammer. Die Kammer besteht aus einem CF35-Kreuzstück und hatte den Vorteil der kompakten Abmessungen. Die Kammer ließ sich mit einer Membranpumpe evakuieren und mit einem Gaseinlasssystem wieder fluten. Mit Hilfe eines Nadelventils ist jeder beliebige Druck zwischen 1000 mbar und 2 mbar (Limit der Pumpe) einstellbar. Als Haltelaser kommt ein Argonionenlaser Innova 90 von Coherent zum Einsatz. Er wird im Single-Line-Modus betrieben und besitzt eine variable Ausgangsleistung von bis zu 2 Watt bei 514 nm. Um die für die Levitation relevanten Kräfte möglichst groß zu machen, braucht man die maximal

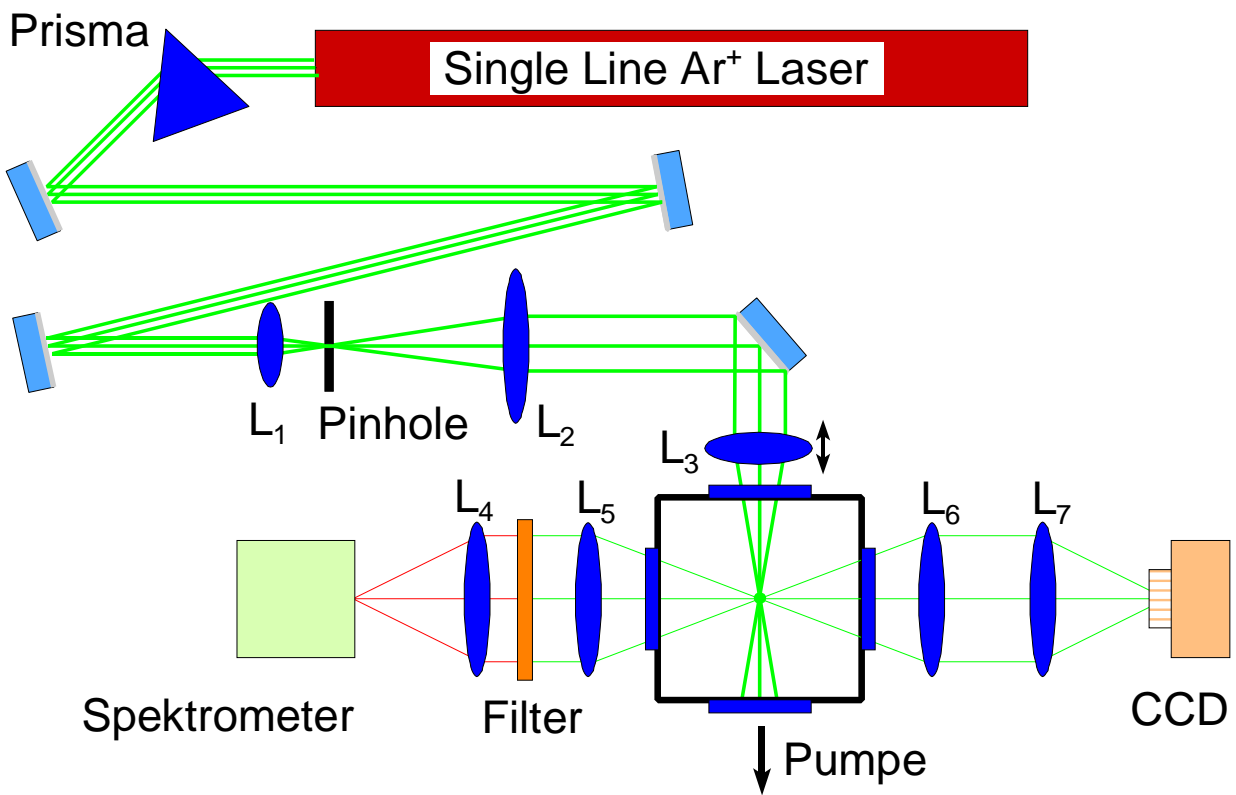


Abb. 3.1: Experimentelle Anordnung, bestehend aus Ar⁺-Laser, Strahlauweitungsoptik, Vakuumkammer und Kamera und Spektrometer zur Detektion.

mögliche Intensität. Das bedeutet, der Laser muss so gut wie möglich fokussiert werden. Den kleinsten Fokus erhält man bei Fokussierung der TEM_{00} -Mode, die eine gaussförmige Intensitätsverteilung besitzt. Der fokussierte Strahl besitzt ebenfalls ein Gaussprofil und das Maximum an Intensität ist auf einen sehr kleinen Raumbereich beschränkt. Um sicherzustellen, dass der Laser auf der TEM_{00} -Mode emittiert, wurde der Laserspot aufgeweitet und auf eine CCD-Kamera abgebildet. Mit Hilfe eines Zeilenselektors wurde die Zeile mit der maximalen Intensität, also aus der Mitte des Laserspots, ausgelesen. Das Intensitätsverhalten konnte auf einem Oszilloskop beobachtet und per Computer ausgewertet werden. Die Intensität ist in Abbildung

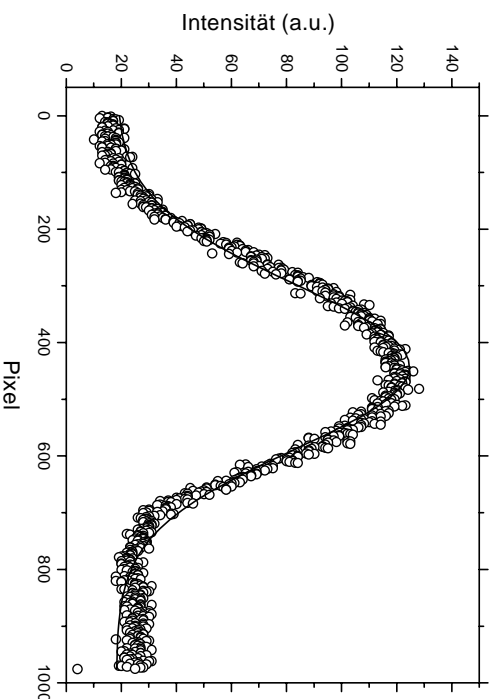


Abb. 3.2: Intensitätsprofil des aufgeweiteten Laserspots bei 514 nm entlang einer ausgewählten Zeile.

3.2 dargestellt. Die durchgezogene Linie zeigt einen Fit mit einer Gausskurve. Die Daten werden recht gut wiedergegeben. Abweichungen von der Gausskurve resultieren aus einer Abflachung im Maximum der Verteilung. Die Abflachung kommt einerseits durch eine Sättigung der Kamera zustande. Um dies zu minimieren, wurde der Strahl mit Graufiltern abgeschwächt. Zusätzlich kann der Strahl aber auch geringe Anteile der TEM_{01} -Mode (Donut-Profil) oder der TEM_{10} -Mode ($\cos^2 \vartheta$ -Verteilung) enthalten. Obwohl sich beide Effekte nicht völlig ausschließen lassen, ist ihr Anteil nicht größer als 10-20 %, was sich bei den Experimenten gut anhand des beobachteten Streulichtprofils beurteilen ließ.

CCD-Kamera

Zur Beobachtung der levitierten Teilchen wurde eine CCD-Kamera verwendet. Bei der verwendeten Kamera handelt es sich um ein Schwarz-Weiss-Modul der Firma Monacor. Der Bildchip hat eine Auflösung von 512×582 Bildpunkten. Der geringe Dynamikbereich schränkt ihren Gebrauch als Intensitätsmesser ein und sie ist in den Experimenten tatsächlich nur zur Beobachtung und Lokalisierung genutzt worden.

Optik

Um einen möglichst kleinen Fokusdurchmesser und damit hohe Intensitäten zu erhalten, muss die fokussierende Linse gut ausgeleuchtet werden. Das Limit für den Fokusdurchmesser liegt im Bereich der Wellenlänge. Es ist durch

$$w_0 = \frac{f \lambda}{\pi w_s} \quad (3.1)$$

$$= \frac{\lambda}{\pi \text{N.A.}} \quad (3.2)$$

$$= \frac{\lambda}{\pi} \cdot F\text{-Zahl} \quad (3.3)$$

gegeben [Dem98]. Die einzelnen Größen sind in Abbildung 3.3 erklärt, N.A. ist die numerische Apertur und die F – Zahl deren Kehrwert. Mit den im Experiment ty-

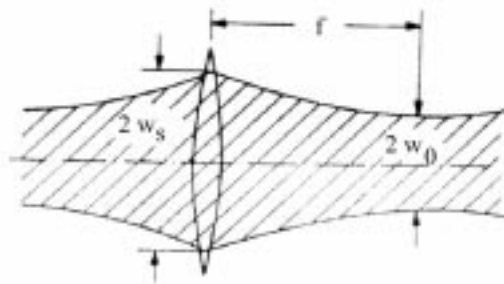


Abb. 3.3: Skizze zur Fokusabschätzung

pischen Werten von $f = 100$ mm und $w_s = 2,5$ cm würde man einen minimalen Taillendurchmesser von $2w_0 = 2,6 \mu\text{m}$ erhalten.

Linse	f in mm	\varnothing in mm
L ₁	Mikroskopobjektiv N.A. = 0,3	
L ₂	250	75
L ₃	100	25
L ₄	50	50
L ₅	75	50
L ₆	75	50
L ₇	50	50

Tabelle 3.1: Übersicht der verwendeten Linsen für Aufweitungs- und Nachweisstrahlengang.

Der prinzipielle Aufbau der verwendeten optischen Komponenten ist in Abbildung 3.1 zu sehen. Mit einem Prisma wird die ASE (amplified spontaneous emission) des Lasers dispergiert. Diese wird im weiteren Strahlverlauf am Pinhole abgetrennt. Das Pinhole hat einen Durchmesser von $20\text{ }\mu\text{m}$. Es dient als räumlicher Filter, um das gaussförmige Intensitätsprofil zu verbessern bzw. zu erhalten. Am Pinhole selbst gehen etwa 25 % der Laserleistung verloren. In Tabelle 3.1 sind die optischen Komponenten für die Strahlaufweitung und den Nachweis aufgelistet.

Mit Hilfe dieser optischen Anordnung wird der Strahl etwa um einen Faktor 10 aufgeweitet. Der tatsächlich erreichte Taillendurchmesser kann bildtechnisch abgeschätzt werden. Bei ausreichend hohem Druck (nahezu Normaldruck) lässt sich die Rayleighstreuung des Gases mit der CCD-Kamera abbilden. Über entsprechende Längenkali-brierung erhält man eine Abschätzung für den Durchmesser der Strahltaille.

In Abbildung 3.4 kann man die Rayleigh-Streuung an der in der Kammer befindlichen Luft beobachten. Das Bild wurde bei Normaldruck aufgenommen. Mit der Kalibrierung ergibt sich ein Taillendurchmesser ($2w_0$) von ca. $30\text{ }\mu\text{m}$. Die Abweichung zur theoretischen Grenze ist sehr groß. Einerseits wird aus Abb. 3.4 deutlich, dass für eine genauere Auswertung eine stärkere Vergrößerung notwendig ist. Andererseits wird der Fokus mit nur einer Linse erzeugt. Formel 3.3 besagt, dass die Linse für einen guten Fokus möglichst weit ausgeleuchtet werden muss. Damit nehmen aber auch die Abbildungsfehler dramatisch zu. Der dominante Fehler ist dabei

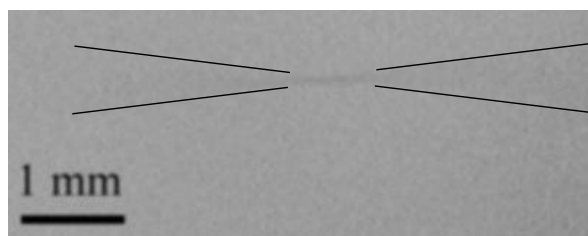


Abb. 3.4: Rayleigh-Streuung an Luft aufgenommen bei Normaldruck. Die Beobachtung erfolgte in der Experimentieranordnung. 1 mm sind 70 Pixel. Die schwarzen Striche zeigen den Intensitätsverlauf ausserhalb des Fokalbereichs an. Die Taille des Strahls ist als dunkler Bereich ersichtlich.

die sphärische Aberration, die zu einer Verzeichnung des Fokus (Diakaustik) führt (siehe z.B. [Ber87]). Es gilt also, hier einen vertretbaren Kompromiss zu finden. Für künftige Experimente im UHV empfiehlt sich die Verwendung eines vergüteten Mikroskopobjektives mit einer F-Zahl < 1 .

Teilchenquelle und Kondensator

Im Inneren der Vakuumkammer befindet sich ein Plattenkondensator mit einem integriertem Piezo-Schallwandler als Teilchenquelle. Dieser wird mit einem Funktionsgenerator mit $U_{pp} = 18$ V bei einer Resonanzfrequenz von ca. 2,4 kHz betrieben. Der Laserfokus liegt etwa 1 cm über der Teilchenquelle (vgl. Abb. 3.5). Auf der Membran des Lautsprechers wird der Diamantstaub deponiert. Durch einen kurzen Puls aus dem Funktionsgenerator wird der Staub aufgewirbelt, so dass genügend viele Teilchen auch durch den Laserfokus fliegen. Dabei werden die langsamsten Teilchen vom Laser eingefangen. Es ist möglich, auch mehr als ein Teilchen zu fangen, jedoch befinden sich die meisten Teilchen in relativ instabilen Positionen, so dass schon kleine Störeinflüsse (andere Teilchen, Gasbewegung, Erwärmung, ...) zum Verlust dieser Teilchen führen können. Eine zweite Möglichkeit, die Teilchen in den Laserstrahl zu bringen, bietet das Gaseinlasssystem. Ein T-Stück lässt sich mit Diamantstaub befüllen. Durch einen Gaspuls können die Partikel in die zuvor evakuierte Kammer gebracht werden. Auf diese Art und Weise lässt sich auch die Strahltaile abbilden. Abbildung 3.6 zeigt die so aufgewirbelten Teilchen. In Abbildung 3.7 sind mehrere levitierte Nanodiamanten zu erkennen. Die Partikel wurden

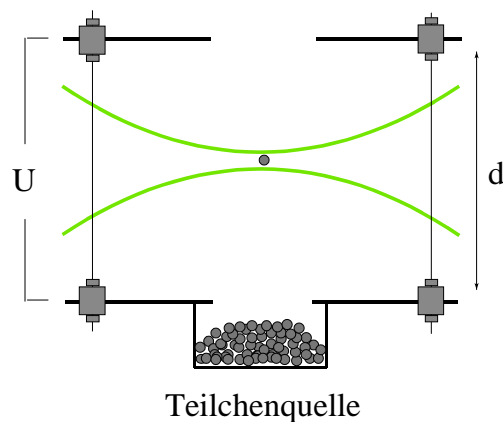


Abb. 3.5: Schema der Teilchenquelle und des Plattenkondensators, $U \leq 250$ V, $d = 1,8$ cm.



Abb. 3.6: Aufgewirbelte Nanodiamanten im Laserstrahl, das Bild ist invertiert, d.h. schwarze Punkte entsprechen hellen Partikeln, die F -Zahl ist 8.

ebenfalls über das Gaseinlasssystem in die Kammer eingebracht. Nach einer gewissen Zeit haben die Teilchen durch Gasreibung an kinetischer Energie verloren und sind entsprechend langsamer. Einzelne Teilchen werden dann durch die Lichtkräfte in den Fokus hineingedrückt bzw. gezogen. Bei anderen Teilchen ist die Streukraft so groß, dass sie nahezu ungestört durch den Fokus hindurchfliegen.

Abbildung 3.8 zeigt ein einzelnes levitiertes Teilchen in einer Argonatmosphäre.

Die Aufnahme wurde mit einem Neutralglasfilter mit einer Transmission von 1 % gemacht. Es werden nur noch sehr helle Teilchen abgebildet.



Abb. 3.7: Mehrere levitierte Nanopartikel, die großen Partikel (3) in der Mitte sind levitiert, die restlichen sedimentieren durch das Beobachtungsgebiet. Die Aufnahme erfolgte ohne Filter.



Abb. 3.8: Einzeln levitierter Nanodiamant in einer Argonatmosphäre mit $p=500$ mbar. Die Aufnahme wurde mit 1 %-Filter gemacht, weniger helle Teilchen werden dabei nicht erfasst.

Spektrometer

Für den Nachweis der Fluoreszenz kam das Gitterspektrometer S 2000 der Firma OPTO con [Opt98] zum Einsatz. Im Inneren des Spektrometers befindet sich als disperses Element ein Gitter mit 600 Strichen pro Millimeter. Der spektrale Bereich erstreckt sich von 350 nm bis 1000 nm. Das dispergierte Licht wird auf ein lineares CCD-Array mit 2048 Elementen abgebildet. Die Größe eines Pixels beträgt $12,5 \times 200 \mu\text{m}^2$. Für das Detektionslimit werden für einen count 86 Photonen angegeben. Dabei liegt das maximale Detektionsvermögen bei 160 000 Photonen pro Pixel, also rund 2000 counts. Das nachzuweisende Licht wird mit einer im Kern $200 \mu\text{m}$ dicken VIS/NIR-Multimode-Glasfaser in das Spektrometer eingekoppelt. Der SMA-Stecker besitzt eine numerische Apertur von $N.A. = 0,22$. Das Spektrometer wird mit einer A/D-Wandlerkarte (ADC-500) über einen PC ausgelesen. Die möglichen Integrationszeiten für eine Einzelmessung liegen zwischen 8 ms und 60 s.

3.2 Diamantproben

Die Experimente in dieser Arbeit wurden ausschließlich mit Diamantstaub durchgeführt. Er bestand aus Nanodiamanten. Die Größe der Einzelkristallite ist mit 5 nm angegeben. Abbildung 3.9 zeigt elektronenmikroskopische Aufnahmen der

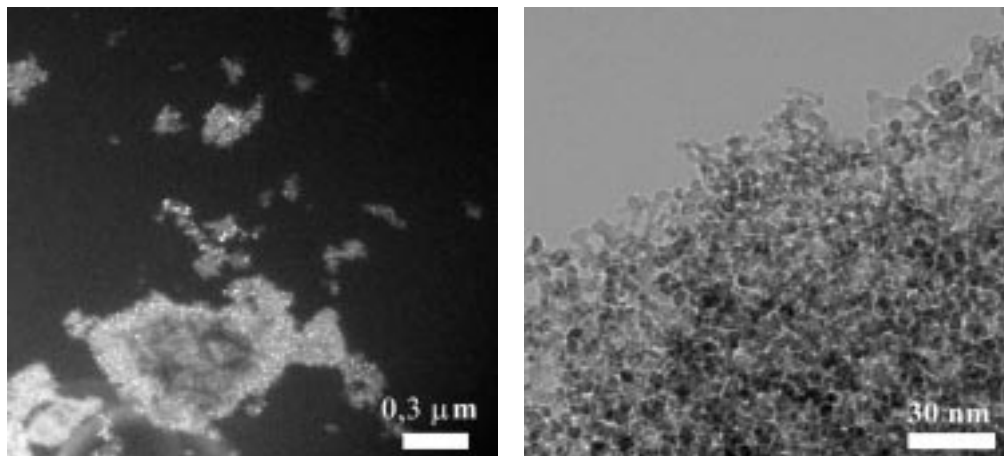


Abb. 3.9: Elektronenmikroskopische Aufnahmen der verwendeten Teilchen, großes Agglomerat (links), zusammengeclusterte Einzelkristallite (rechts).

Partikel. Man erkennt, dass die Teilchen Agglomerate bilden. Im linken Bild ist ein solches Agglomerat zu sehen. Diese haben typische Größen im μm -Bereich. Eine Größenverteilung lässt sich anhand solcher Aufnahmen nicht machen, da es bei der Probenpräparation zu einer weiteren Verklumpung kommen kann. Im rechten Bild sind viele Einzelkristallite zu erkennen. Auch diese bilden ein größeres Agglomerat. Die Einzelkristallite sind aber tatsächlich etwa 5 nm groß. Es ist bekannt, dass die Diamanten relativ stark verunreinigt sind. Das lässt auf Fluoreszenz ohne zusätzliche Präparation hoffen.

Kapitel 4

Untersuchungen und Ergebnisse

4.1 Spektroskopische Untersuchungen

4.1.1 Farbzentren in Nanodiamanten

Um ein Fluoreszenzsignal vom dominanten Streulicht zu trennen, benötigt man entsprechende Filter. Da das Anregungssignal bei 514 nm liegt und das zu erwartende Fluoreszenzsignal rotverschoben ist, braucht man einen entsprechenden Kantenfilter. Verwendet wurden die Langpassfilter OG 530 und OG 550 der Firma SCHOTT. Die Filter besitzen laut Herstellerangaben bei 530 nm bzw. 550 nm eine Transmission von 0,46 und im Sperrbereich (UV - 500/520) $< 1 \cdot 10^{-5}$ ([Sch]). Um ein Fluoreszenzsignal bewerten zu können, müssen die Filter entsprechend charakterisiert werden. In Abbildung 4.1 ist das Transmissionsverhalten der beiden Filter dargestellt. Für diese Charakteristik wurde zunächst das Spektrum des aufgeweiteten Lasers aufgenommen. Zu erkennen ist die Linie bei 514 nm, bei anderen Wellenlängen ist nicht korrigiertes Rauschen des Spektrometers zu beobachten. Für die beiden unteren Kurven sind die entsprechenden Filter in den Strahlengang gebracht worden. Die Unterdrückung der Laserlinie ist bei beiden Filtern etwa gleich und beträgt ca. 6 Größenordnungen. Gut zu sehen ist auch das Öffnungsverhalten der Farbgläser. Obwohl es verschiedene Filter sind, ist auch dieses Verhalten nahezu gleich. Die ansteigende Schulter sollte beim OG 550 stärker rotverschoben sein. Tatsächlich beträgt die Verschiebung nur wenige Nanometer. Das liegt daran, dass der Filter OG 530 drei Millimeter und der Filter OG 550 lediglich zwei Millimeter dick ist. Dies hat ein verändertes Absorptionsverhalten zur Folge, die Werte in [Sch] sind

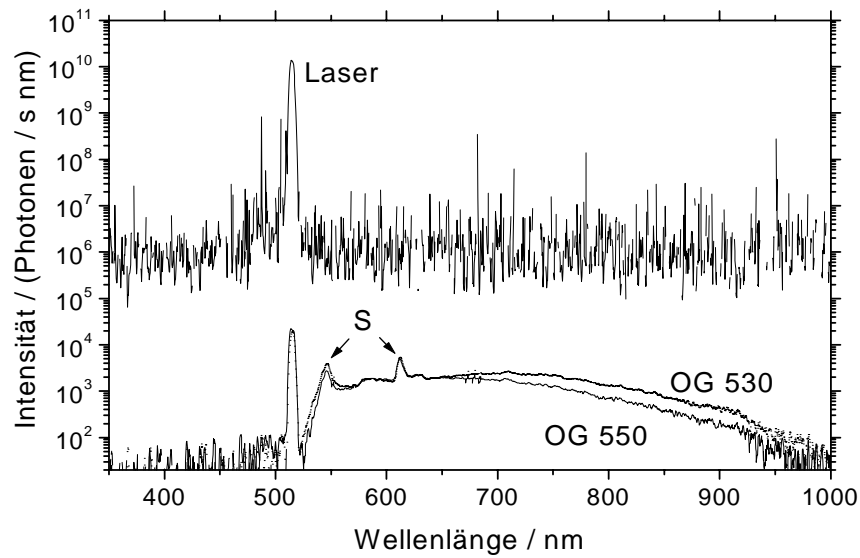


Abb. 4.1: *Transmissions- und Emissionsverhalten der eingesetzten Farbfiler, die mit S bezeichneten Peaks sind Emissionslinien einer Tischlampe, Integrationszeit 40 s.*

auf drei Millimeter dicke Filter bezogen. Das von 520 nm bis 950 nm reichende Signal ist kein Restlicht, sondern die Emission der Filter selbst. Im Vergleich zum Streulicht des Lasers beobachtet man das Fluoreszenzlicht mit einer Unterdrückung um einen Faktor 10^{-7} ! Das bedeutet, dass ein Fluoreszenzsignal von einem gespeichertem Teilchen, mit einer Ausbeute größer 10^{-7} gegenüber dem Streulicht, ohne Probleme nachgewiesen werden kann. Ist die Fluoreszenz dagegen in der Größenordnung der Filterfluoreszenz oder kleiner, so wird sie von dieser verdeckt. In diesem Fall ist eine entsprechende Korrektur erforderlich. Das gemessene Spektrum enthält gleichzeitig alle Informationen. Es setzt sich wie folgt zusammen:

$$I(\lambda) = I_T(\lambda) + I_{FF}(\lambda) . \quad (4.1)$$

$I(\lambda)$ ist die gesamte vom Spektrometer erfasste Intensität, $I_T(\lambda)$ ist der Fluoreszenzanteil der vom Teilchen emittiert wird, und $I_{FF}(\lambda)$ ist die vom Filter stammende Fluoreszenz. Ist nun $I_T(\lambda)$ sehr klein, so wird das gemessene Spektrum von $I_{FF}(\lambda)$ dominiert. Dies macht eine entsprechende Kalibration nötig. Dazu muss das Fluoreszenzverhalten des Filters vom gemessenen Signal abgezogen werden. Es war

experimentell nicht möglich, das Fluoreszenzspektrum der Filter zu ermitteln, welches durch ein laserlevitiertes Teilchen als Streuzentrum hervorgerufen wird. Das Fluoreszenzspektrum des Filters wurde mit einer anderen Anordnung aufgenommen. Man kann das Spektrum eines levitierten Partikels mit dem Spektrum des Filters aus Abb. 4.1 vergleichen, um zu erkennen, ob nennenswerte Teile des Spektrums von der Teilchenfluoreszenz stammen. Dazu nimmt man an, dass die Fluoreszenz

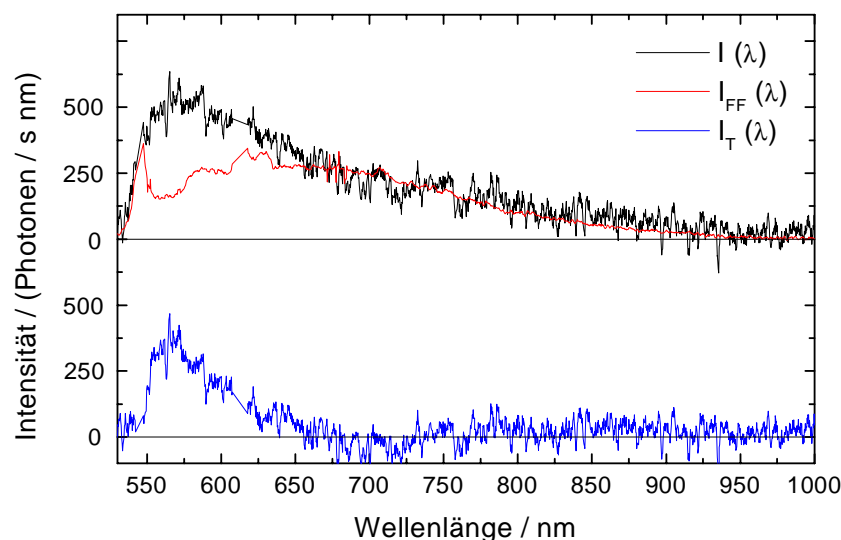


Abb. 4.2: Fluoreszenzspektrum eines levitierten Nanodiamants, das tatsächliche korrigierte Fluoreszenzspektrum des 575 nm Zentrums (blaue Linie) ist entsprechend versetzt dargestellt, die Integrationszeit betrug 40 s.

$I(\lambda) \approx I_{FF}(\lambda)$ ist. Abweichungen können der Teilchenfluoreszenz zugeordnet werden. Aus diesem Grund wurden die Filterfunktion $I_{FF}(\lambda)$ und die Gesamtfunktion $I(\lambda)$ im langwelligen Bereich (700 - 1000 nm) aneinander angeglichen. Eine relativ gute Übereinstimmung ergab sich nach der Division von $I_{FF}(\lambda)$ mit 7,14. Nach dem Abziehen der Filterfunktion $I_{FF}(\lambda)$ von dem Gesamtsignal $I(\lambda)$ erhält man die Teilchenfluoreszenz $I_T(\lambda)$ (Abb. 4.2 unten). Diese weist einen Fehler auf, der durch die Emissionspeaks einer Lampe hervorgerufen wird. Einen weiteren Fehler verursacht die Gitterfunktion des Spektrometers. Im Bereich, in dem beide Kurven angeglichen wurden, beträgt die Gittereffizienz 35-45 %. Dennoch gibt es im Bereich von 550 - 600 nm ein gut erkennbares Signal, welches durch das Teilchen hervorgerufen sein muss. Beim Vergleich mit bekannten Messungen ([Drä99]) zeigt sich, dass

es sich hierbei sehr wahrscheinlich um das 575 nm-Zentrum handelt. Wahrscheinlich ist es ein neutrales N-V-Zentrum. Dieses ist bei Nanokristallen gegenüber der Anregungswellenlänge von 514 nm sensitiver als ein N-V-Zentrum, dessen Emission der Null-Phononen-Linie (ZPL) bei 637 nm zu erwarten ist. Die Emission des negativen N-V-Zentrums ist bei Zimmertemperatur stark verbreitert, was auch in dieser Messung zu beobachten ist. Bei tiefen Temperaturen entsteht ein scharfer Emissionspeak. Eine mögliche Verbesserung beim Detektieren der Fluoreszenzemission wäre die Verwendung von anderen Filtertypen. So filtern z.B. holographische Notchfilter lediglich eine bestimmte Wellenlänge heraus. Mit solchen Filtern könnte man die Anregungslinie gut unterdrücken und den Rest des Spektrums besser detektieren. Da diese Filter keine Absorptionsfilter sind, kann man eine geringere Fluoreszenz von ihnen erwarten.

4.1.2 Spektroskopie an Farbstoffmolekülen

Eine weitere Möglichkeit, die levitierten Teilchen außer über ihr Streulichtsignal zu detektieren, erhält man durch die Benetzung der Teilchen mit Farbstoffmolekülen. Diese haben den Vorteil einer sehr hohen Quantenausbeute. Sie liegt in der Regel zwischen 10 und 40 %. In den nachfolgend beschriebenen Experimenten kam

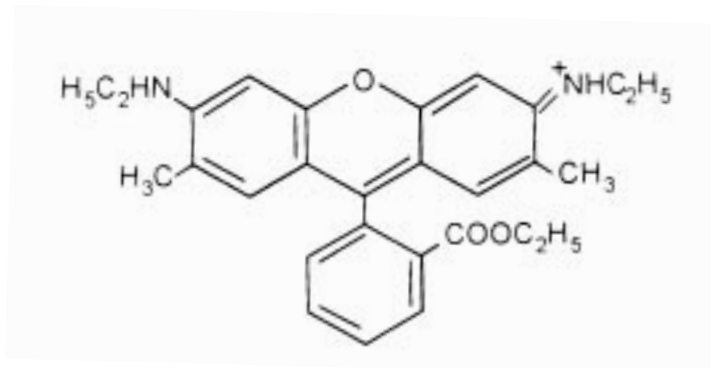


Abb. 4.3: Strukturformel von Rhodamin 6G

der Laserfarbstoff Rhodamin 6G zum Einsatz. Dieser besitzt eine starke Absorption und Fluoreszenz im sichtbaren Spektralbereich. Die Quanteneffizienz wird mit

30% angegeben. Das bedeutet, dass von 100 absorbierten Photonen 30 Photonen als Fluoreszenz emittiert werden. Abbildung 4.3 zeigt die chemische Strukturformel des Laserfarbstoffes. Um die Nanodiamanten mit dem Farbstoff zu benetzen, wurde dieser zunächst in ausreichender Menge in Methanol gelöst. Der Diamantstaub wurde dann in diese Lösung gegeben. Nach guter Durchmischung und der anschließenden Verdunstung des Lösungsmittels waren die Teilchen gut mit dem Farbstoff bedeckt. Eine Aussage über die Schichtdicke der Farbstoffschicht lässt sich aber mit dieser Methode nicht machen. Diese Teilchen wurden auch mit der schon beschriebenen Teilchenquelle in den Strahlengang gebracht und levitiert. Nach erfolgreichem Einfangen wurde zusätzlich mit dem Spektrometer gemessen. Ein solches Spektrum ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Es zeigt neben dem Laserstreupeak, der gleichzeitig

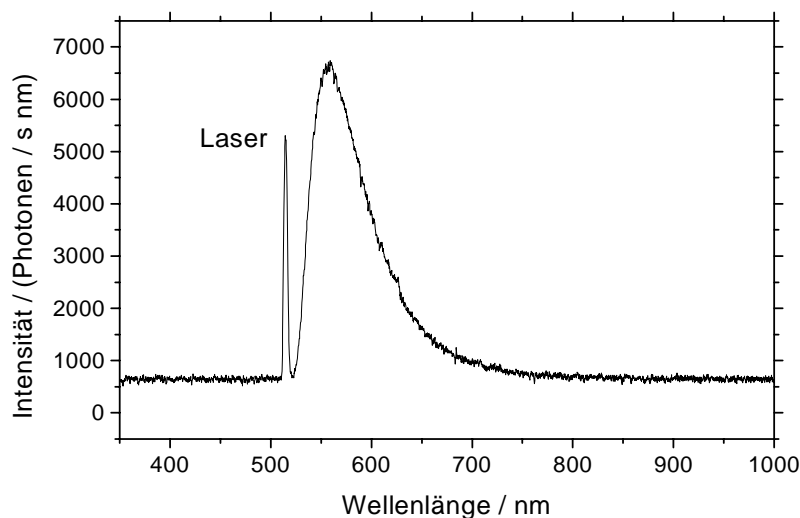


Abb. 4.4: Fluoreszenzspektrum von mit Rhodamin 6G benetzten Nanodiamant, der Laserpeak ist mit Filter OG 530 abgeschwächt, die Integrationszeit beträgt 40 s.

als Anregungslinie dient, auch das Fluoreszenzspektrum des auf die Teilchen aufgebrauchten Farbstoffes Rhodamin 6G. Das Maximum der Fluoreszenz liegt bei 559 nm. Der Streupeak ist wieder mit einem Kantenfilter um etwa 6 Größenordnungen unterdrückt. Mit Hilfe der Intensitätsverhältnisse aus Abb. 4.4 kann man die Anzahl der fluoreszierenden Moleküle abschätzen. Das Streusignal setzt sich nach Gleichung 4.2 zusammen:

$$P_{Streu} = \alpha_{Gitter} \cdot \alpha_{Filter,1} \cdot \frac{\Omega_{Det}}{4\pi} \cdot Q_{Streu} \cdot \sigma_{Partikel} \cdot I_{Laser} . \quad (4.2)$$

α_{Gitter} ist die Effizienz des Gitters und $\alpha_{Filter,1}$ das Transmissionsverhalten des verwendeten Filters. Beide Werte beziehen sich auf 514 nm. $\frac{\Omega_{Det}}{4\pi}$ ist der Raumwinkel der Detektion, $\sigma_{Partikel}$ ist der Streuquerschnitt des Teilchens, Q_{Streu} ist der winkelabhängige Streuanteil und I_{Laser} ist die einfallende Laserintensität. Analog dazu gilt für das Fluoreszenzsignal:

$$P_{Fl} = \alpha_{Gitter} \cdot \alpha_{Filter,2} \cdot \frac{\Omega_{Det}}{4\pi} \cdot N \cdot QE \cdot \sigma_{Abs} \cdot I_{Laser} . \quad (4.3)$$

Die Gitter- und Filterkoeffizienten sind analog, allerdings auf den entsprechenden Wellenlängenbereich bezogen. Die Gittereffizienz wird für den Streupeak und das Fluoreszenzsignal als gleich angenommen. N ist die Anzahl der zur Fluoreszenz beitragenden Moleküle, QE ist die Quanteneffizienz des Farbstoffes und σ_{Abs} ist der Absorptionsquerschnitt eines Moleküls. Durch Umformen erhält man die gewünschte Beziehung:

$$N = \frac{P_{Fl}}{P_{Streu}} \cdot \frac{Q_{Streu} \cdot \sigma_{Partikel} \cdot \alpha_{Filter,1}}{QE \cdot \sigma_{Abs} \cdot \alpha_{Filter,2}} \quad (4.4)$$

Die Werte für P_{Fl} und P_{Streu} erhält man durch Integration der Kurve aus Abb. 4.4. Zum Abschätzen der Molekülanzahl werden folgende Werte verwendet:

$$\begin{aligned} P_{Fl} &= 1960 \text{ cnt} \cdot \text{s}^{-1} \\ P_{Streu} &= 90 \text{ cnt} \cdot \text{s}^{-1} \\ Q_{Streu} &= 1 \\ \sigma_{Partikel} &= 10^{-8} \text{ cm}^2 \\ \sigma_{Abs} &= 10^{-16} \text{ cm}^2 \\ \alpha_{Filter,1} &= 10^{-6} \\ \alpha_{Filter,2} &= 0,9 \\ QE &= 0,3 \end{aligned}$$

Das Einsetzen dieser Werte ergibt für die Molekülanzahl:

$$N = 8100 \pm 2 \text{ Größenordnungen} \quad (4.5)$$

Der Fehler wird aufgrund der teilweise großzügigen Abschätzungen mit 2 Größenordnungen angegeben. 10^4 Moleküle würden einen ca. 5 nm großen Partikel ergeben. Bei Streulichtmethoden zur Detektion von Partikeln hat man es im Gegensatz zu 10^4 Molekülen mit $10^9 - 10^{11}$ Molekülen zu tun. Somit zeigt sich, dass Partikel im nm-Bereich nachweisbar sind.

Von Interesse, vor allem für die Langzeitdetektion der levitierten Teilchen, war das zeitliche Verhalten des Fluoreszenzsignals. Abbildung 4.4 zeigt das Fluoreszenzverhalten eines levitierten Teilchen nach verschiedenen Messzeiten. Es zeigt sich, dass

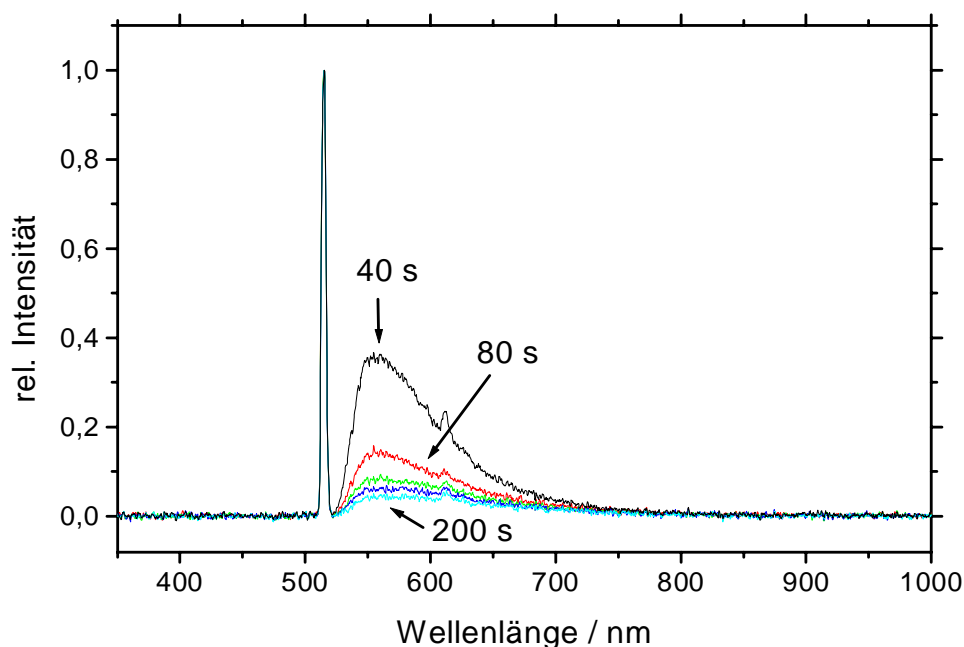


Abb. 4.5: Zeitliche Abfolge von Fluoreszenzspektrum eines mit Rhodamin 6G benetzten Nanodiamanten, die Zeitabstände sind durch die Messzeit des Spektrometers gegeben.

schon nach wenigen Minuten die Fluoreszenzintensität deutlich abgenommen hat.

Dieser Effekt wird als Photobleichen (Photobleaching) bezeichnet. Er tritt bei allen organischen Farbstoffmolekülen auf. Bei den meisten dieser Moleküle ist die Gesamtzahl der von ihnen emittierten Photonen auf etwa 10^7 beschränkt. Bei den hier verwendeten Anregungsleistungen von einigen kWcm^{-2} ist diese Schwelle schnell erreicht. Deshalb sind diese Teilchen unter den gegebenen Bedingungen für Langzeitbeobachtung ungeeignet. In Abbildung 4.6 ist die zeitliche Abnahme des Fluo-

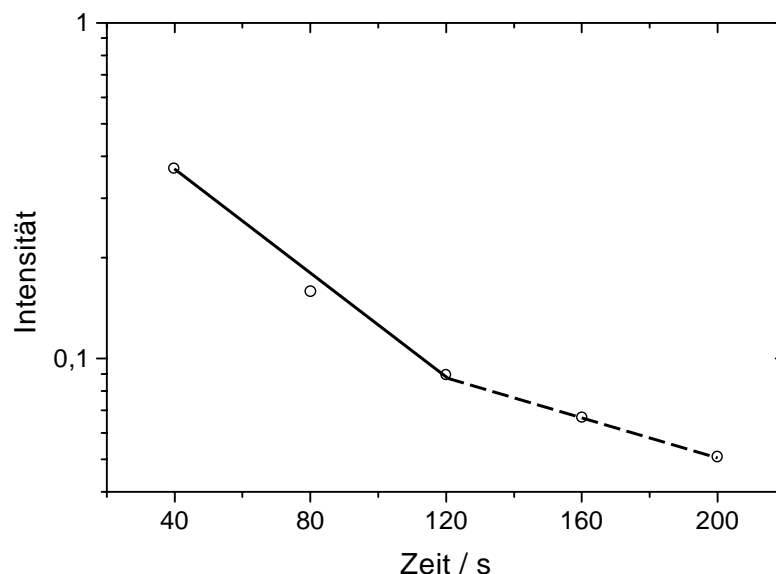


Abb. 4.6: Zeitliche Abnahme der Fluoreszenzintensität im Intensitätsmaximum bei 559 nm.

reszenzsignales aufgetragen. Man kann die zu erwartende exponentielle Abnahme der Intensität beobachten, die bei kleiner werdendem Signal etwas abflacht. Solche Messungen wurden mit mehreren Teilchen durchgeführt. Brauchbare Beobachtungszeiten lagen allerdings immer im Minutenbereich. In dieser Arbeit dienten diese Experimente als Demonstrationsbeispiel.

4.2 Experimente zur Kräftecharakterisierung

In diesem Abschnitt werden einige Experimente beschrieben, die zum besseren Verständnis der Wechselwirkung der verschiedenen Kräfte bei unterschiedlichen Bedingungen beitragen sollen. Dabei werden vor allem die im theoretischen Teil beschriebenen

Kräfte und ihre Abhängigkeiten von verschiedenen Versuchsparametern berücksichtigt. Für eine Einschätzung des Größenregimes der Teilchen und der dominanten Kräfte in diesem Bereich, war zunächst eine Größenbestimmung erforderlich.

4.2.1 Geschwindigkeiten und Größenverteilung

Von besonderem Interesse ist die Größenverteilung der Agglomerate im Diamantstaub. Eine solche Verteilung aus einer Vielzahl von elektronenmikroskopischen Bildern zu gewinnen, ist sehr schwierig. Deshalb wird hier eine andere Möglichkeit der Größenanalyse ausgenutzt.

Kleine Partikel sedimentieren in einem umgebenden Gas mit dem Druck p gemäß der Brownschen Bewegung. Das bedeutet, dass man durch den Druck bestimmen kann, welche Partikel „schweben“ und welche „fallen“. Bei Drücken kleiner 100 mbar konnte man viele Teilchen schweben sehen. Diese Partikel konnten nur selten gespeichert werden. Besser gespeichert wurden Teilchen, die bei 100 mbar aus dem Lautsprecher in das Beobachtungsvolumen gebracht wurden. Bei ihnen konnte man feststellen, dass sie zum großen Teil fallen, was bei höheren Drücken nur schwer zu beurteilen war. Diese Beobachtung wird ausgenutzt, um die Partikelgröße dieser Klasse zu bestimmen. Dazu wurden mit Hilfe der Teilchenquelle bei einem Druck von 60 mbar viele Teilchen in der Kammer aufgewirbelt. Nach einer gewissen Zeit beobachtet man das Fallen vieler Teilchen mit konstanter Geschwindigkeit. Am Beobachtungsmonitor konnten die Geschwindigkeiten der Teilchen bestimmt werden. In Abbildung 4.7 sind die Orte als Funktion der Zeit für drei verschiedene Teilchen aufgetragen. Daraus lässt sich die Geschwindigkeit der Teilchen ermitteln. Außerdem lässt sich feststellen, dass alle drei Teilchen eine konstante Geschwindigkeit besitzen. Diese stellt sich aufgrund des Kräftegleichgewichts zwischen Gewichtskraft und Stokesreibung ein. Dies ist für die Auswertung wichtig. Im Fall $K_n < 1$ ist die Geschwindigkeit v eines Teilchens der Dichte ϱ_p in einem Gasmedium der Dichte ϱ_g mit dem Teilchenradius R über die Beziehung

$$v = \frac{2(\varrho_p - \varrho_g)gR^2}{9\eta} f(K_n) \quad (4.6)$$

verknüpft [Dav97]. g ist die Fallbeschleunigung, K_n die Knudsenzahl und $f(K_n)$ ist der sogenannte Cunningham Korrekturfaktor. In guter Näherung lässt sich $f(K_n)$

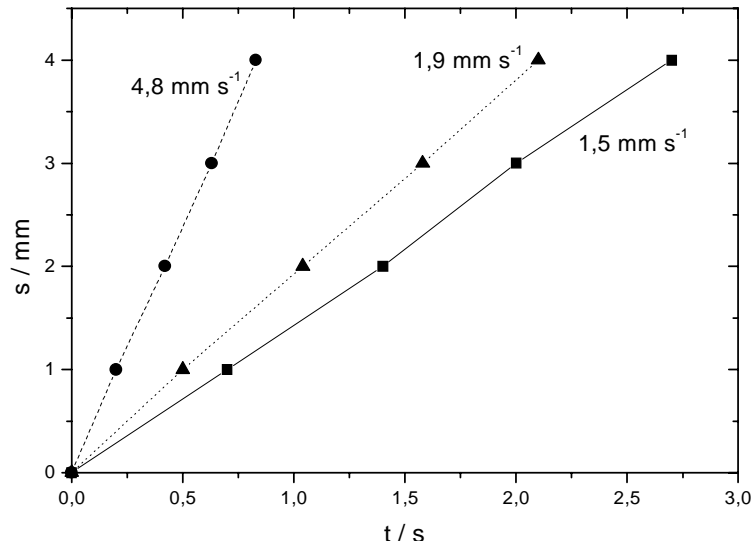


Abb. 4.7: Geschwindigkeiten verschiedener Teilchen in Luft bei einem Druck von 60 mbar.

durch

$$f(K_n) = (1 + 0,874K_n) \quad (4.7)$$

wiedergeben. Im Fall $K_n \approx 1$ gilt die Beziehung $F_{Stokes} = F_g$ exakt. Mit Hilfe dieser Formeln wurde aus den gemessenen Geschwindigkeiten eine Größenverteilung ermittelt. Dazu wurden die Geschwindigkeiten von 50 verschiedenen Teilchen erfasst und ausgewertet. Die Verteilung ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Bei dieser Art der Teilchenaufwirbelung werden bevorzugt große Teilchen erfasst. Deshalb ist die Größenverteilung nicht für die gesamten in der Kammer befindlichen Nanodiamanten repräsentativ. Die meisten Teilchen sind $14 - 20 \mu\text{m}$ (Radius) groß. Daraus lässt sich folgern, dass Teilchen aus 5 nm großen Diamanten zum Teil große Agglomerate bilden, die sich im Laserfeld speichern lassen.

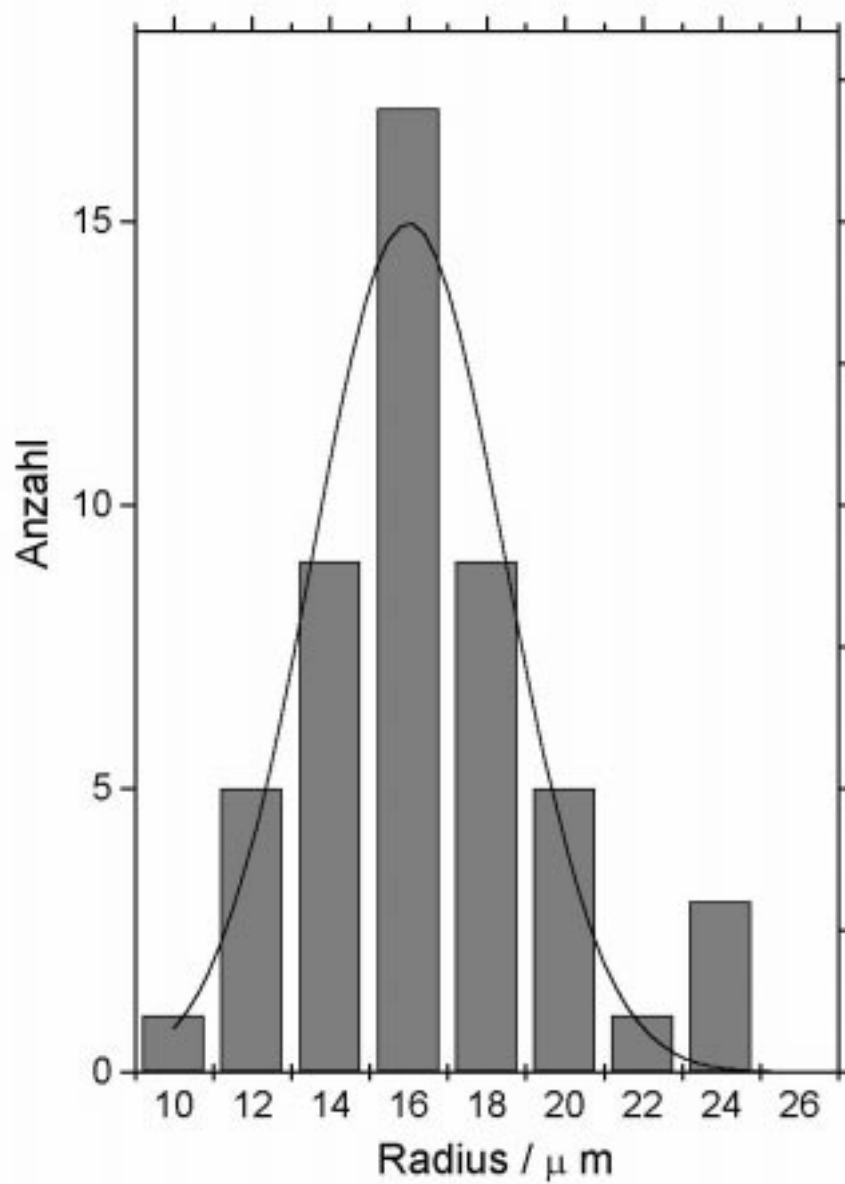


Abb. 4.8: Größenverteilung aufgewirbelter Nanodiamanten bei 60 mbar gemittelt über 50 Teilchen mit angeftteter Gaussfunktion, die Balkenbreite ist 2 μm .

4.2.2 Elektrostatische Kraft

Um die Größenordnung der Lichtkräfte etwas näher zu beleuchten, braucht man eine zweite, gut kontrollierbare Kraft. Die elektrische Kraft nach Gleichung 2.19 ist eine solche Kraft. Bis auf die genaue Anzahl der Elementarladungen ist alles bekannt. Der Plattenkondensator (vgl. Abb. 3.5) hat einen Plattenabstand von 18mm. Es wurde versucht, levitierte Teilchen durch Anlegen einer Spannung merklich aus ihrer Position auszulenken. Doch trotz des Anlegens von maximal 300 V ließ sich keine Auslenkung $> 100 \mu\text{m}$ beobachten. Wie man in Abbildung 2.7 sehen kann, ist diese Kraft für ein $10 \mu\text{m}$ -Teilchen auch sehr klein gegenüber den Lichtkräften. Damit deckt sich die Beobachtung mit der groben Einteilung der Kräfte nach der Teilchengröße im Theorieteil, wo gezeigt wird, dass F_{el} sehr klein gegen die übrigen Kräfte für $R \geq 1 \mu\text{m}$ sein soll. Außerdem wurde in dieser Darstellung vorausgesetzt, dass das Teilchen 100 Elementarladungen tragen soll. Die durch Reibungselektrizität auf einen Partikel übertragene Ladungszahl ist aber wahrscheinlich kleiner. Mit dieser Kraft sind die gewünschten Ergebnisse also nicht zu erreichen. Das bedeutet, dass die gespeicherten Partikel sehr stabil gegen äußere Störungen sind.

4.2.3 Levitation großer Partikel mit variablem I und p

Um ein Teilchen im Laserfeld zu speichern, benötigt man wenigstens zwei Kräfte, die sich kompensieren. Die Beobachtung der levitierten Teilchen hat gezeigt, dass die meisten Teilchen nicht im Fokus lokalisiert waren. Die Entfernung vom Fokus betrug in der Regel einige Millimeter. In diesem Bereich des fokussierten Strahl kann die Intensität durch die Beziehung

$$I = \frac{P}{z^2} \quad (4.8)$$

beschrieben werden. Außerdem wurde festgestellt, dass sich Teilchen sowohl vor dem Fokus („links“) als auch danach („rechts“) speichern ließen. Mit einer Veränderung der Laserleistung konnte auch eine Ortsveränderung des gespeicherten Teilchens beobachtet werden. Solch ein Verhalten zeigt Abbildung 4.9. Diese Abhängigkeit wurde bei einem Druck von $p = 150 \text{ mbar}$ aufgenommen. Das Teilchen verschiebt sich um ca. 2 mm. Ein ähnliches Verhalten ist in Abbildung 4.10 dargestellt. Der

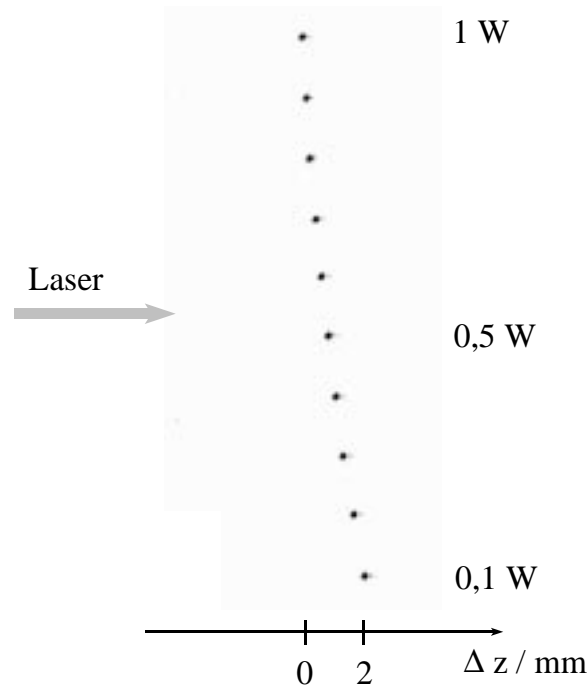


Abb. 4.9: Teilchenverschiebung bei Änderung der Laserleistung, aufgenommen bei $p=150$ mbar. Die Verschiebung beträgt ca. 2 mm.

Diamantpartikel ist vor dem Fokus gespeichert, bei einer Änderung der Laserleistung verändert sich auch der Ort des Partikels. Die Verschiebung ist entgegengesetzt zu der in Abbildung 4.9. Wie kommt diese Verschiebung der Teilchen zustande? Wie bereits erwähnt, ist zum Speichern ein Kräftegleichgewicht notwendig. Die Kräfte müssen in unterschiedlicher Weise von der Intensität abhängen, damit eine Leistungsänderung zu einer Verschiebung führt. Nimmt man für diese Abhängigkeit ein Potenzgesetz mit $F_1 \sim aI^n$ und $F_2 \sim bI^m$ an, so ergibt sich:

$$F_1 = aI^n = bI^m = -F_2 . \quad (4.9)$$

Verknüpft man Gleichung 4.9 mit der Beziehung 4.8 so ergibt sich für den Ort des Teilchens die Beziehung:

$$z = c \cdot \sqrt{P} \quad (4.10)$$

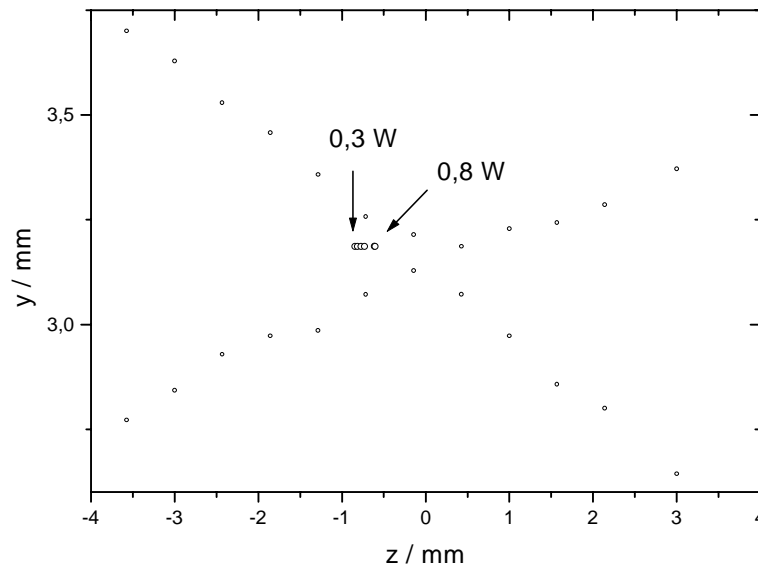


Abb. 4.10: Teilchenposition in Abhängigkeit der Laserleistung. Die kleinen Punkte bezeichnen die Strahltaille.

mit der Konstanten c . Das bedeutet, der Ort des gespeicherten Teilchens ändert sich mit der Wurzel der eingestrahlten Leistung. Diese Abhängigkeit konnte experimentell bestätigt werden. Abbildung 4.11 zeigt den Ort eines levitierten Teilchens als Funktion der Laserleistung. Die Darstellung zeigt klar die lineare Ortsabhängigkeit von der Wurzel der Laserleistung. Die beobachtete Verschiebung weicht in dem betreffenden Leistungsbereich (0,2-1W) auch nicht sehr stark von einer Geraden ab, obwohl eine Krümmung aller Kurven in einer solchen Auftragung evident ist (hier nicht gezeigt). Als besonderes Indiz für das Verhalten gemäß Gleichung 4.10 wird die Tatsache betrachtet, dass sich das Teilchen im Grenzwert $p \rightarrow 0$ in den Fokus $z = 0$ ($\pm 50 \mu\text{m}$) verschiebt. Weiterhin ist zu erkennen, dass mindestens eine der beteiligten Kräfte vom Druck abhängen muss, denn eine Druckänderung führt ebenfalls zu einer Verschiebung des Teilchens. In Abbildung 4.12 sind die Anstiege der Geraden aus Abbildung 4.11 aufgetragen. Diese Darstellung zeigt, dass für einen kleineren Druck die Verschiebung, und damit die verursachende Kraft, zunimmt. Ein weitere druckabhängige Verschiebung ist in Abbildung 4.13 zu beobachten. Ein

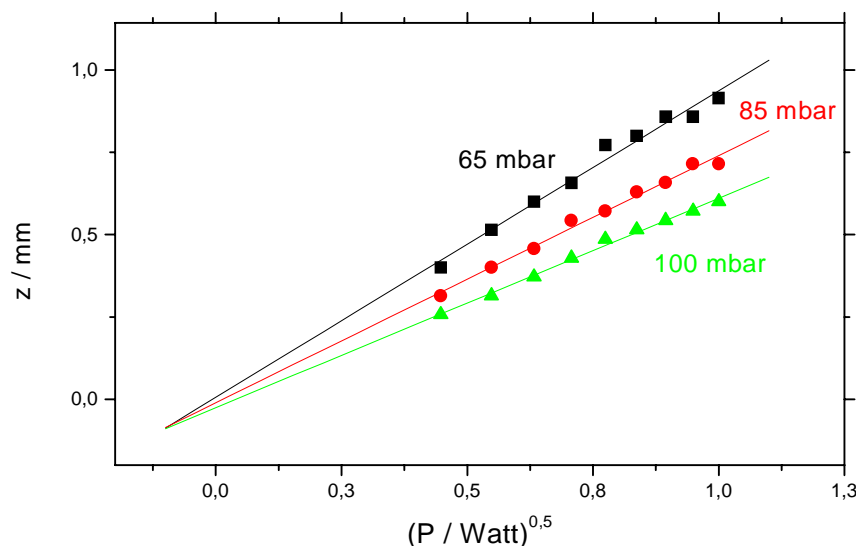


Abb. 4.11: Teilchenposition eines Teilchens in Abhängigkeit der Laserleistung und des Druckes. Alle Messpunkte sind mit dem gleichen Teilchen gemacht worden.

levitiertes Teilchen befand sich vor dem Fokus (negatives z). Die Laserleistung ließ sich am Steuergerät zwischen 0,5 W und 1 W umschalten. Diese Leistungsänderung bewirkt einen Ortswechsel des Partikels. Beim Zurückschalten der Leistung ging das Teilchen auf den ursprünglichen Platz zurück. Dieses Verhalten ist mit sinkendem Druck untersucht worden. Bei $p = 80$ mbar ist ein zweites Teilchen levitiert worden. Das erste Teilchen ging bei einem Druck von 70 mbar verloren, das zweite bei 40 mbar. Auffällig bei beiden Teilchen ist, dass mit niedrigerem Druck die Verschiebung entgegengesetzt der Strahlrichtung zunimmt (der Fokus befindet sich in der oberen Achse).

Da sowohl die Streukraft als auch die Gradientenkraft druckunabhängig sind, stellt sich die Frage: Welche Kräfte sind an diesem Gleichgewicht beteiligt? Die größte, von der Intensität und explizit vom Druck abhängende Kraft ist die Photophorese. Die einzige bekannte Gegenkraft, die groß genug ist, die Photophorese zu kompensieren, ist die Stokeskraft (vgl. Abb. 2.7). Diese ist zwar nicht explizit von I und p abhängig, aber die Überlegungen aus Abschnitt 2.1.3 zeigen, dass diese Größen auch auf die Stokeskraft Einfluss haben. Die Photophorese erzeugt sich ihre Gegenkraft, die Sto-

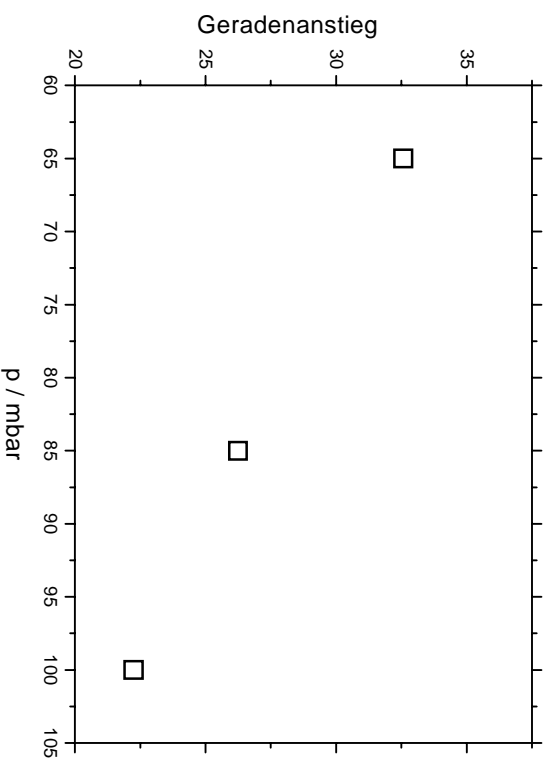


Abb. 4.12: Anstiege der Geraden aus Abb. 4.11 als Funktion vom Druck. Mit sinkendem Druck wächst die Verschiebung.

keskraft, im Prinzip selbst. Je heißer das Teilchen wird, desto größer werden die Gasgeschwindigkeit auf dem Teilchen und die Fluchtgeschwindigkeit der Moleküle vom Teilchen sein. Das impliziert wiederum eine hohe Anströmgeschwindigkeit auf der anderen Teilchenseite, und damit eine hohe Stokeskraft.

Weitere Beobachtungen zeigten, dass es mit einer durchs Abpumpen erzeugten Strömung möglich war, Teilchen in Fokushöhe zu ziehen und dort zu halten. Nach Abstellen der Strömung gingen die Teilchen in ihre ursprüngliche Position zurück. Das heißt, es gibt ein abstoßendes Potential in der Nähe des Fokus. Dieses Potential wird von der Photophorese erzeugt. Es ist um so größer, je näher man dem Fokus kommt. Abbildung 4.14 zeigt die Beschaffenheit des Potentials. Ausgehend von der Intensität nach Gleichung 4.8 erhält man das Kraftgesetz für die Photophorese. Es ist der Intensität proportional. Im unteren Bild ist das Potential dargestellt. Man erhält es durch Integration des Kraftgesetzes. Im Fokus ist das Potential groß, weit außerhalb des Fokus ist es gleich null. Mit der Stokeskraft kann man Teilchen in Richtung Fokus ziehen. Das Teilchen läuft dabei gegen den Potentialberg an. Es sitzt dann an dem Ort, wo beide Kräfte gleich groß sind. Wird die Stokeskraft

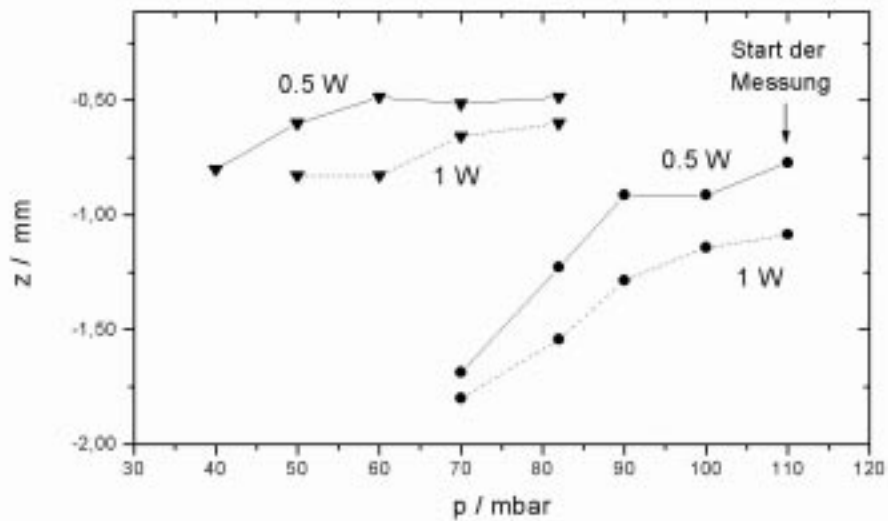


Abb. 4.13: Teilchenposition zweier gleichzeitig levitierter Partikel. Die Messung startet bei 110 mbar und 0,5 W, die Laserleistung wurde für jeden Druck zwischen 0,5W und 1W umgeschaltet. Zu Beginn der Messung ist nur ein Teilchen levitiert, bei 80 mbar kommt ein zweites hinzu. Bei 70 mbar ging das erste Teilchen verloren.

(Strömung) abgestellt, so läuft es auf dem abstoßenden Potential in seine anfängliche Position zurück. In Abbildung 4.15 sind die Kraft- und Potentialverhältnisse für ein levitiertes Teilchen dargestellt. Am Nulldurchgang der Gesamtkraft befindet sich das Teilchen. Dort halten sich Stokeskraft und Photophorese die Waage. Im unteren Bild ist das entsprechende Potential dargestellt. Den hier geäußerten Gedankengängen zur Kräftebilanz zwischen Photophorese und Stokeskraft kann man sich auch auf folgendem Weg nähern: Ursache für die Kräfte ist in jedem Fall die Aufheizung des Teilchens. Für eine bestimmte Intensität befindet sich das System im Gleichgewicht. Stört man das System durch Erhöhung der Leistung des Lasers, „sucht“ das Teilchen erneut den Ort $I = \text{const.}$ auf. Mit dieser Überlegung erhält man ebenfalls das Gesetz 4.10. Diese Vorstellungen können folgende gemachte Beobachtungen geschlossen erklären:

- Die Speicherung der Teilchen erfolgte nicht im Fokus.

- Die Speicherung von mehreren Partikeln ist möglich.
- Die Speicherung der Partikel kann sowohl „vor“ als auch „nach“ dem Fokus erfolgen.
- Die Verschiebung der Teilchen durch die Leistungsänderung ist auf beiden Seiten des Fokus gleich.
- Positive und negative Verschiebung (in Strahlrichtung gesehen) können mit positiver und negativer Photophorese erklärt werden.

Zur Untermauerung dieser Punkte sind allerdings weitere, detaillierte Untersuchungen notwendig.

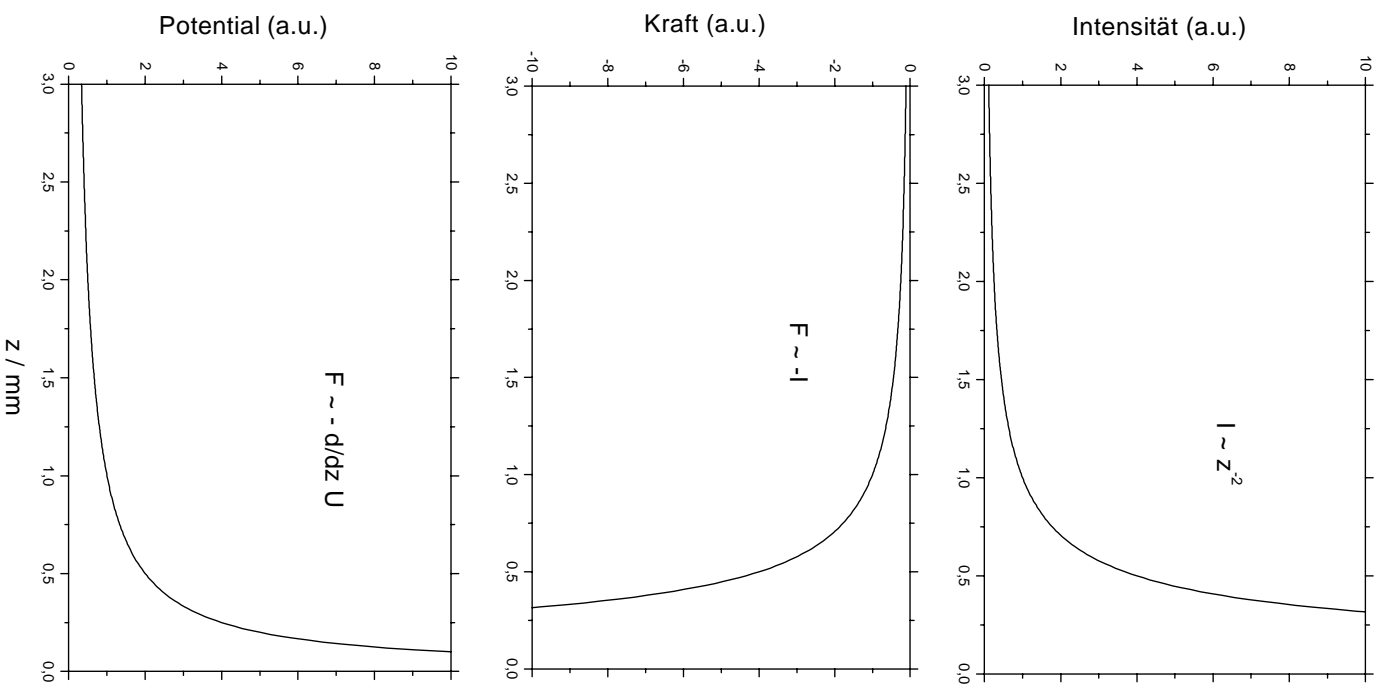


Abb. 4.14: Abhängigkeiten der Intensität (oben), der photophoretischen Kraft (Mitte) und deren Potential (unten) vom Ort

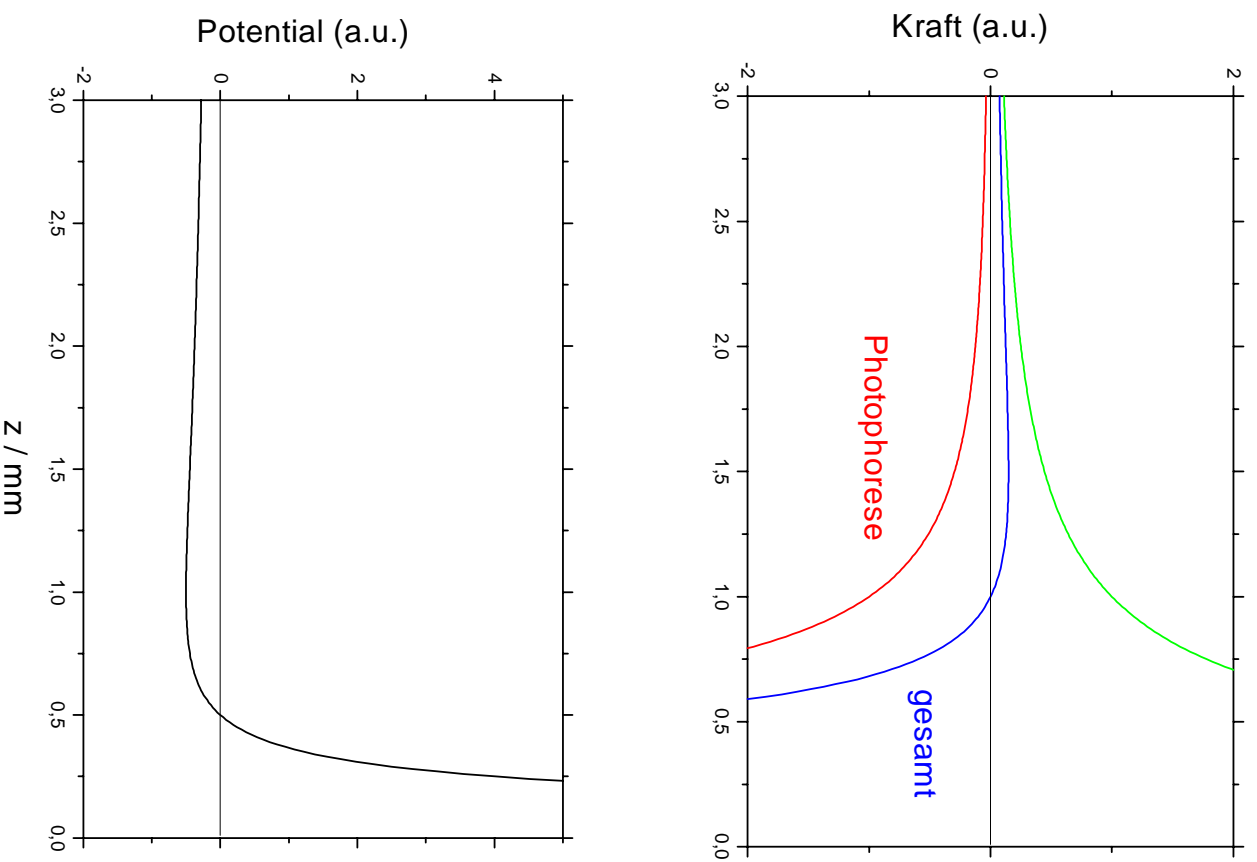


Abb. 4.1.5: Photophorese (rot) und Gegenkraft (Stokes) (grün) sowie deren Summe (oben). Unten ist das daraus resultierende Potential zu sehen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente besaßen zwei Schwerpunkte. Zum einen wurden Fluoreszenzeigenschaften der verwendeten Nanodiamanten untersucht, zum anderen wurden die Speicherkräfte der Laserlevitation etwas näher untersucht. Fluoreszenz von den unbestrahlten und levitierten Diamanten wurde nachgewiesen. Die natürliche Dotierung mit Farbzentren ist offensichtlich für eine Beobachtung ausreichend. Allerdings ist diese sehr schwach und mit dem vorhandenen Spektrometer nur über lange Integrationszeiten zu beobachten. Die Dauerbeobachtung eines gespeicherten Teilchens ist so nicht gut möglich. Mit der Verwendung eines empfindlicheren Spektrometers können solche Messungen aber gemacht werden.

Ein weiteres wichtiges Ergebnis besteht in der Tatsache, dass sich hochdotierte Nanodiamanten mit der verwendeten Anordnung nicht speichern lassen. Hier entstand zum Teil der Eindruck, dass die Aggregate unter dem Einfluß der starken Absorption so heiß wurden, daß sie in der Nähe des Fokus zerplatzen. Es empfiehlt sich daher die Verwendung einer elektrodynamischen Falle.

Über den Fluoreszenznachweis mit Farbstoffmolekülen konnte eine Nachweisgrenze des aktuellen Aufbaus von einigen Tausend Molekülen nachgewiesen werden. Damit sind gespeicherte Partikel im nm-Bereich nachweisbar. Die Experimente dienten allerdings lediglich zur Demonstration, weil durch das Ausbleichen der Farbstoffmoleküle eine Langzeitbeobachtung nicht möglich ist.

Die Kräfte auf ein levitiertes Partikel bewegen sich im pN-Bereich und entziehen sich damit dem Bereich der täglichen Erfahrung. Darüber hinaus variieren die Kräfte als Funktion der Partikelgröße über viele Größenordnungen.

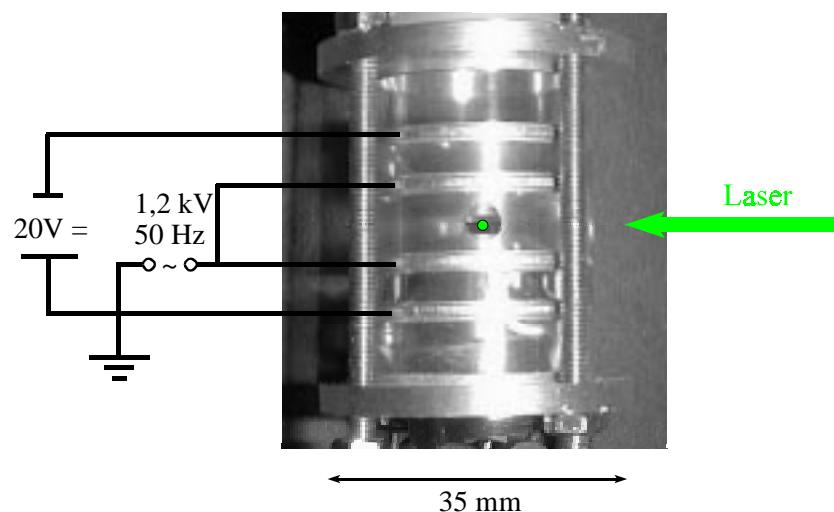


Abb. 5.1: Levitierter Nanodiamant in Quadrupolfalle

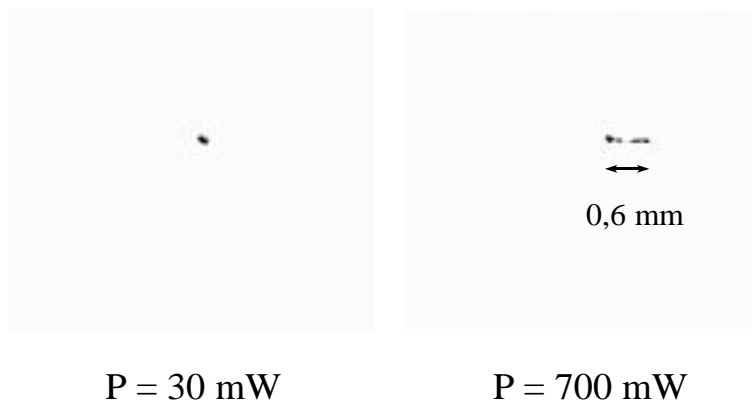


Abb. 5.2: Auswirkungen der Laserleistung auf die Bahn des Teilchens

Bei der Untersuchung der Speicherkräfte wurde festgestellt, dass im betrachteten Größenregime der Teilchen andere Kräfte als bei kleinen Teilchen zur Levitation beitragen. Dominant sind hier die Photophorese und die Stokesreibung. Dieses Ergebnis stimmt mit der Abschätzung der Kräfte im Abschnitt 2.1.6 des Theorie-Kapitels überein. Es wurde ein einfaches Modell zur Veranschaulichung dieses Kräftegleich-

gewichtetes entwickelt. Eine Möglichkeit, die Photophorese noch genauer zu studieren, bietet die Verwendung einer elektrodynamischen Falle, wie in Abb. 5.1 gezeigt. In Abbildung 5.2 ist die Teilchenbahn eines levitierten Partikels mit unterschiedlich starker Lasereinstrahlung zu sehen. Beide Aufnahmen entstanden in der Blickrichtung aus Abb. 5.1. Bei kleiner Laserleistung wird die Teilchenbahn kaum gestört. Nimmt die Laserleistung jedoch zu, so verändert sich auch die Teilchenbahn. Mit der Kenntnis der haltenden Kräfte der Falle, lassen sich möglicherweise auch Informationen über die Photophorese gewinnen. Besonders interessant ist es, mit einem Experiment die Photophorese als Funktion vom Druck zu untersuchen. Denn für $p \rightarrow 0$ muss die Kraft F_{Ph} verschwinden. Die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente bewegen sich aber noch in einem Bereich, in dem $F_{Ph} \sim \frac{1}{p}$ gilt. Hier stellt sich die Frage nach dem Umschlagpunkt dieser Abhängigkeit.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich unterstützt und so zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein Dank gilt Herrn Prof. D. Gerlich dafür dass er mir das Thema zur Bearbeitung überlassen hat.

Weiterhin möchte ich Herrn Dr. Stephan Schlemmer für die umfassende Betreuung und die Unterstützung bei der Auswertung und der Interpretation der Ergebnisse danken.

Herrn Dr. S. Schulze möchte ich für die elektronenmikroskopischen Aufnahmen meinen Dank aussprechen.

Herrn Dr. Wrachtrup danke ich für die Bereitstellung der bestrahlten Diamantproben.

Außerdem danke ich allen Mitarbeitern der Professur Gasentladungs- und Ionenphysik für die angenehme Arbeitsatmosphäre und für ihre Unterstützung.

Ein großes Dankeschön auch an Vroni fürs Korrekturlesen.

Besonderer Dank gilt meinen Eltern und Großeltern für die vor allem finanzielle Unterstützung meines Studiums.

Literaturverzeichnis

- [Arn82] S. Arnold, *Size dependence of the photophoretic force*, *J. Appl. Phys.*, **53**, No. 7, 5314-5319, July (1982).
- [Ash70] A. Ashkin, *Acceleration and trapping of particles by radiation pressure*, *Phys. Rev. Lett.*, **24**, No. 4, 156-159, January (1970).
- [Ash71] A. Ashkin, *Optical levitation by radiation pressure*, *Appl. Phys. Lett.*, **19**, No. 8, 283-285, October (1970).
- [Ash76] A. Ashkin, *Optical levitation in high vacuum*, *Appl. Phys. Lett.*, **28**, No. 6, 333-335, March (1976).
- [Ash86] A. Ashkin, *Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles*, *Optics Letters*, **11**, No. 5, 288-290, May (1986).
- [Ash92] A. Ashkin, *Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime*, *Biophysical J.*, **61**, 569-582, February (1992).
- [Ber87] L. Bergmann, C. Schäfer, *Lehrbuch der Experimentalphysik III, Optik*, Walter de Gruyter, Berlin New York, 1987.
- [Ber98] M. W. Berns, *Mit Laserwerkzeugen ins Zellinnere*, *Spektrum der Wissenschaft*, 56-61, Juni (1998).
- [Chu91] S. Chu, *Laser manipulation of atoms and particles*, *Science*, **253**, 861-866, August (1991).
- [Dav92] G. Davies, *Vacancy-related centers in diamond*, *Physical Review B*, **46**, No. 20, 13157-13170, June, 1997.

- [Dav97] E. J. Davis, *A History of Single Aerosol Particle Levitation*, Elsevier Science Inc., 1997.
- [Dem98] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy*, Springer Verlag, Berlin Heidelberg, 1998.
- [Drä99] A. Dräbenstedt, *Hochauflösende Spektroskopie und Mikroskopie einzelner Moleküle und Farbzentren bei tiefen Temperaturen*, Dissertation, Institut für Physik, TU Chemnitz, 1999.
- [Eps23] P. S. Epstein, *On the resistance experienced by spheres in their motion through gases*, *Phys. Rev.*, **22**, 710-733, February (1923).
- [Gre99] K. O. Greulich, *Micromanipulation by Light in Biology and Medicine*, Birkhäuser Verlag, Basel Boston Berlin, 1999.
- [Gru97] A. Gruber, *Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers*, *Science*, **276**, 2012-2014, June (1997).
- [Har96] Y. Harada, *Radiation force on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime*, *Optics Communications*, **124**, 529-541, March (1996).
- [Hom97] F. Homilius, *Fluoreszenzkurzzeitspektroskopie an Plasmapolymerschichten mit eingelagerten Farbstoffmolekülen*, Dissertation, Institut für Physik, TU Chemnitz, 1997.
- [Hul81] H.C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles*, Dover Publications, Inc., New York, 1981.
- [Ink99] Innovationskolleg, *Methoden und Materialsysteme für den Nanometerbereich (INK2/B1-1)*, Abschluss- und Ergebnisbericht, Chemnitz, 1999.
- [Kai96] T. Kaiser, *Optische Untersuchung von Oberflächeneffekten an Mikropartikeln*, Dissertation, VDI Verlag GmbH, Düsseldorf, 1996.
- [Lan96] M. Lankers, *Charakterisierung optisch gefangener Mikropartikel durch elastische und inelastische Lichtstreuung*, Dissertation, Shaker Verlag, Aachen, 1996.

- [Lid94] D. R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 74th Edition, CRC Press, Inc., Boca Raton, 1994.
- [Mar99] J. Martin, *Konfokale Mikroskopie an fluoreszenten Nanostrukturen*, Diplomarbeit, Institut für Physik, TU Chemnitz, 1999.
- [Opt98] OPTO con
Optical Sensors and Systems
Pohlandstr. 17
01309 Dresden
<http://www.optocon.de>
- [Ree76] L. D. Reed, *Low Knudsen Number Photophoresis*, *J. Aerosol Sci.*, **8**, 123-131, June (1976).
- [Sch] SCHOTT Glaswerke, *Datenbuch Optische Glasfilter*.
- [Sei98] John H. Seinfeld, Spyros N. Pandis, *Atmospheric Chemistry and Physics. From Air Pollution to Climate Change.*, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1998.
- [Stö94] H. Stöcker *Taschenbuch der Physik*, Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main, 1994.
- [Wei99] M. Weidemüller, *Optische Dipolfallen*, *Physikalische Blätter*, Heft 12, 41-47, Dezember (1999).